

# 金属及び絶縁体におけるスピン 電気変換現象の研究

著者	吉野 達郎
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	11301甲第15565号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/58831">http://hdl.handle.net/10097/58831</a>

博士論文

金属及び絶縁体における  
スピン-電気変換現象の研究

吉野達郎

平成25年

# 目次

第 1 章	序論	1
1.1	本論文の構成	2
1.2	スピン流とスピン波	3
1.2.1	スピン流の定義	3
1.2.2	伝導電子スピン流	3
1.2.3	スピン流の拡散方程式	5
1.2.4	スピン波	7
1.2.5	スピン波スピン流と交換スピン流	10
1.3	磁化ダイナミクス-スピン流相互作用	14
1.3.1	スピン移行トルクと Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式	14
1.3.2	強磁性体/常磁性金属二層膜におけるスピン移行トルク	15
1.3.3	スピンプンピングによるスピン流生成	16
1.4	スピンホール効果	16
1.4.1	スピンホール効果と逆スピンホール効果	16
1.4.2	スピンホール効果とスピン軌道相互作用	18
1.4.3	相対論における逆スピンホール効果	19
1.5	スピン間における交換相互作用	20
1.5.1	超交換相互作用	20
1.5.2	ジャロシンスキー・守谷相互作用	22
1.6	$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ の基礎物性	23
第 2 章	実験方法	25
2.1	試料の作製法	25

2.1.1	常磁性・強磁性金属薄膜の成膜法 . . . . .	25
2.2	実験系の測定法 . . . . .	26
2.2.1	マイクロ波分光法を用いた磁化ダイナミクスの測定 . . . . .	26
2.2.2	強磁性共鳴における磁化ダイナミクス . . . . .	28
2.2.3	逆スピンホール効果による電圧の測定 . . . . .	32
2.2.4	電気分極発現による分極電流の測定 . . . . .	33
第 3 章	スピンプンピング誘起逆スピンホール効果による生成スピン流の物質依存性 . . . . .	35
3.1	スピンプンピング誘起逆スピンホール効果によるスピン流生成 . . . . .	36
3.2	強磁性共鳴を用いたスピン流生成と逆スピンホール効果による起電力測定 . . . . .	36
3.3	スピンプンピングによる強磁性共鳴スペクトルと逆スピンホール効果による起電力 . . . . .	40
3.4	強磁性金属/Pt 薄膜における強磁性共鳴の外部磁場角度依存性 . . . . .	41
3.5	スピンプンピング誘起生成スピン流の NiFe 合金組成比依存性 . . . . .	44
3.6	強磁性金属/Pt 界面において生成されるスピン流の導出 . . . . .	46
3.7	スピンプンピング誘起生成スピン流の強磁性金属の飽和磁化、緩和定数依存性 . . . . .	49
3.8	スピンプンピング誘起スピン流と強磁性金属の物質パラメーターの関係 . . . . .	50
3.8.1	強磁性金属/Pt 二層膜と強磁性金属単層膜の強磁性共鳴スペクトル . . . . .	50
3.8.2	生成スピン流の強磁性金属の物質パラメーター依存性 . . . . .	52
3.9	本章のまとめ . . . . .	56
第 4 章	$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ におけるスピン波スピン流誘起電気分極の測定 . . . . .	58
4.1	スピン波スピン流誘起電気磁気効果 . . . . .	58
4.1.1	ノンコリニアスピン配列による電気分極誘起現象 . . . . .	59
4.1.2	スピン波によるスピン-電気変換現象の測定 . . . . .	61
4.2	面内・面直磁場におけるスピン波スピン流誘起分極電流の測定 . . . . .	63
4.3	スピン波スピン流誘起分極電流の直流磁場依存性の測定 . . . . .	67
4.4	スピン波スピン流誘起分極電流の掃引時間依存性の測定 . . . . .	67
4.5	スピン波スピン流誘起分極電流及び電圧の $\text{SiO}_2$ 酸化膜電極を用いた測定 . . . . .	69



4.6	Au 及び $\text{SiO}_2$ 電極を用いたときの逆スピンホール電圧及び電流の測定 . .	73
4.7	スピン波スピン流誘起分極電流のマイクロ波の一様励起時における測定 .	74
4.8	スピン波スピン流のスピン-電気変換係数の導出 . . . . .	77
4.8.1	スピン波の傾角及び回転角の導出 . . . . .	77
4.8.2	静磁スピン波における分散曲線の波長及び減衰長の導出 . . . . .	79
4.8.3	交換スピン波における波長及び減衰長の導出 . . . . .	81
4.8.4	本研究におけるスピン-電気変換係数の導出 . . . . .	83
4.9	本章のまとめ . . . . .	85
第 5 章 結論		86
参考文献		90

# 第 1 章

## 序論

従来のエレクトロニクスデバイスでは、電子の電荷としての自由度を利用して、物質中の電気的特性を制御を行ってきた。しかし近年、電子の電荷だけでなく、電子のスピンとしての自由度も積極的に利用した「スピントロニクス」が盛んに研究されるようになった [1, 2]。スピントロニクスによって、物質中の電気的特性だけでなく、磁場を介さない磁気的特性の制御も実現した。スピントロニクスは、Peter Grünberg と Albert Fert らが発見した金属複合膜における巨大磁気抵抗効果 (Giant Magneto-Resistance: GMR) の発見 [3, 4] が発端となっている。これは複合膜の磁化の相対的な空間配置によって電気抵抗が変化する現象である。

現在のスピントロニクスにおける重要な概念の一つとして、スピン角運動量の流れである「スピン流」がある [5]。スピン流の登場によって、スピン注入磁化反転 [6, 7] や電流誘起磁壁移動 [8] など、物質中の電気・磁気的性質を操るための新規な概念を生み出している。そして、スピン流に関する研究が隆盛を極めた背景の一つには、微細加工技術の向上にある。スピン角運動量は電荷とは違い、保存量ではないため、物質中で長くとも数  $\mu\text{m}$  のオーダーで消失してしまう [9]。しかし、微細加工技術の向上によって、ナノスケールの測定用素子を作り出すことが可能になり、スピン流を扱うことができるようになった。そして、スピン流は今までにない多様な物性を発現させており、従来のエレクトロニクスのようにその可能性を引き出すことが肝要である。

スピン流は重要な性質の一つとして、磁化との間でスピン角運動量の受け渡しを行い、相互作用を行うことができる [10]。たとえば、スピン流が磁性体中に注入されることにより、磁化の向きが変調されるが、逆に磁化からのスピン角運動量の受け渡しにより、スピ

ン流が物質中で生成される。物質の磁氣的性質を操るためには、スピン流の生成・制御を自在に行うことが、現代のスピン트로ニクスにとって必要不可欠である。本論文では、磁化とスピン流の間の相互作用を理解するために、強磁性/常磁性金属系においてスピン流の物理を系統的に調べた。そして、スピン流-電流変換現象を用いて、スピン流の定量化に成功したことを報告する (第 3 章)。

もう一つのスピン流の重要な性質として、電流と相互作用を行い、物質中で量子相対論的効果であるスピン-電気変換現象を誘起する。既に金属及び半導体中ではスピン-電気変換現象が発見され、体系的な理解が進んでいる (スピンホール効果)。しかし、これは伝導電子が媒介するスピン流のみに限られている。多様な物質中におけるスピン流の物理について理解が深まれば、より多くの可能性が広まるはずである。本論文では、磁性絶縁体中においてもスピン-電気変換現象を発見できたことを報告する (第 4 章)。相対論的効果により物質中を磁気モーメントが運動することにより、電気双極子が発現するが、それが実際に磁性絶縁体を用いた系で実現できることがわかった。

## 1.1 本論文の構成

本論文は以下の通りに構成される。第 1 章では、本研究を理解する上で必要なスピン流に関する基礎物理、物質中のスピン-電気変換現象、スピン流-磁化相互作用について解説する。第 2 章では、本研究で用いた試料の作製方法及び実験方法について詳しく述べる。第 3 章では、強磁性金属/Pt 二層膜において生成されたスピン流の定量法について報告する。強磁性金属/Pt 二層膜において、磁化ダイナミクス及びスピン流の相互作用を利用することにより、スピン流を生成した。そして Pt 中でスピン-電気変換現象である逆スピンホール効果を利用することによって、スピン流を電圧として電氣的に検出した。様々な強磁性金属を利用することによって、強磁性体の物質パラメータからスピン流を定量することが可能であることを明らかにした。第 4 章では、伝導電子によるスピン流とは異なる機構を持つスピン波スピン流を利用して、フェリ磁性絶縁体である ( $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ :YIG) におけるスピン-電気変換現象が観測できたことを報告する。YIG 上でスピン波スピン流を励起して、スピン-電気変換現象により誘起された電気分極を分極電流として検出した。第 5 章では、最終的に本論文で得られた結果をまとめた。

## 1.2 スピン流とスピン波

### 1.2.1 スピン流の定義

スピン流とはスピン角運動量の流れのことである。スピン流  $\mathbf{j}_s$  は、磁化  $\mathbf{M}$  に対する連続方程式から定義を行うことができる。スピン緩和や磁場を考慮しないとすると、スピン角運動量保存則により、ある体積  $\Omega$  中の  $\mathbf{M}$  の時間変化  $\int_{\Omega} \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} d\Omega$  が  $\Omega$  の表面  $S$  から流れ込む磁気モーメント流  $-\int_S \gamma \mathbf{j}_s \cdot d\mathbf{n}$  に等しくなる。ここで、 $\gamma$  はジャイロ定数である。そして、Gauss の方程式を利用することによって、磁化の連続方程式としてスピン流

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma \nabla \cdot \mathbf{j}_s \quad (1.2.1)$$

が導出される。スピン角運動量のそれ自体がベクトル量であるため、スピン流は2階のテンソル量となる。スピン流について述べるときには、スピン方向と空間方向の二つの量を、考慮しなければならない。

スピン流のキャリアとして、伝導電子やマグノン<sup>\*1</sup>が代表的なものとして挙げられ、現在盛んに研究が行われている。それぞれのキャリアに対応するものが、伝導電子スピン流及びスピン波スピン流である。以降、伝導電子スピン流及びスピン波スピン流について解説していく。

### 1.2.2 伝導電子スピン流

スピン角運動量の担い手が電子であることから、外部電場を印加することによってフェルミ面近傍の分布関数がずれ電流が発生すると同様に、外場によって伝導電子を通じてスピン角運動量が運搬される。これが非平衡流である伝導電子スピン流であり、あるサイト  $i$  における電流及び伝導電子スピン流を以下の様に示すことができる。

まず以下に示すハミルトニアン  $H$  を用いて、磁性と伝導について考える。

$$H = - \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^{\dagger} c_{j\sigma} - J \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{s}_i \quad (1.2.2)$$

---

<sup>\*1</sup> 強磁性体中で、隣合ったスピンの歳差運動に位相差があるときのスピンの集団励起モードをスピン波と呼ぶ。スピン波を準粒子として記述したものがマグノンである。

ここで、 $\mathbf{s}_i \equiv \frac{1}{2} \sum_{\sigma, \sigma'} c_{i\sigma}^\dagger(\boldsymbol{\sigma})_{\sigma, \sigma'} c_{i\sigma'}(\boldsymbol{\sigma})$  ( $\boldsymbol{\sigma}$  はパウリ行列) であり、 $c_{i\sigma}^\dagger(c_{i\sigma})$  は伝導電子の生成 (消滅) 演算子、添字  $\sigma = \uparrow, \downarrow$  はスピン状態である。(1.2.2) 式の第1項の  $t_{ij}$  は  $j$  サイトから  $i$  サイトへの電子移動の確率振幅である。そして、第2項は  $i$  サイトにおける局在スピン  $\mathbf{S}_i$  と伝導電子スピン  $\mathbf{s}_i$  の間の交換相互作用である。各サイト  $(i, j, \dots)$  に局在スピンの一つずつ存在すると考える。

ここでハイゼンベルグの運動方程式<sup>\*2</sup>を基に、スピンの従うべき運動方程式について着目する。 $i$  サイトにおける電子スピンの従う方程式は、

$$\frac{d}{dt} \mathbf{s}_i = \frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{s}_i] = \frac{1}{\hbar} J \mathbf{s}_i \times \mathbf{S}_i - \nabla \cdot \mathbf{j}_s^i \quad (1.2.3)$$

となる。ここで、 $-\nabla \cdot \mathbf{j}_s^i$  はスピンの流れの湧き出しを表すための形式的な表現だと考える。(1.2.3) 式のスピン流  $\mathbf{j}_s^i$  は、電流  $\mathbf{j}_c^i$  と対比して表現すると、

$$\mathbf{j}_c^i = -\frac{i}{\hbar} \sum_{j>i} \frac{1}{2} \mathbf{R}_{ij} (t_{ji} c_j^\dagger c_i - t_{ij} c_i^\dagger c_j) \quad (1.2.4)$$

$$\mathbf{j}_s^i = -\frac{i}{\hbar} \sum_{j>i} \sum_{\sigma, \sigma'} \frac{1}{2} \mathbf{R}_{ij} (t_{ji} c_{j\sigma}^\dagger(\boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma'} c_{i\sigma'} - t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger(\boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma'} c_{j\sigma'}) \quad (1.2.5)$$

となる (ここで、 $\mathbf{R}_{ij}$  は、 $i \rightarrow j$  サイトへ向かうベクトル)。電流が、電子の実質的な移動 ( $i \rightarrow j$  サイトへの遷移  $t_{ij}$  からその逆  $t_{ji}$  を引いたもの) だけを含んでいるのに対し、スピン流はそれ以外にもスピンの方向に関する情報 ( $\mathbf{s}_{ij} \equiv \frac{1}{2} \sum_{\sigma, \sigma'} c_{i\sigma}^\dagger(\boldsymbol{\sigma})_{\sigma, \sigma'} c_{j\sigma'}(\boldsymbol{\sigma})$ ) を含んでいることがわかる。(1.2.4) 式から、電流  $\mathbf{j}_c^i$  は、(1.2.5) 式において  $(\boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma'} \rightarrow \delta_{\sigma\sigma'}$  としたものである。

ここで、スピン流の概念を考えるにあたって、スピンの量子化軸を  $z$  軸方向に固定した成分である  $\mathbf{j}_{sz}$  に着目する。電流  $\mathbf{j}_c$  の  $\uparrow$  成分と  $\downarrow$  成分をそれぞれ  $\mathbf{j}_\uparrow, \mathbf{j}_\downarrow$  とすると、電流及びスピン流は、

$$\mathbf{j}_c = \mathbf{j}_\uparrow + \mathbf{j}_\downarrow \quad (1.2.6)$$

$$\mathbf{j}_{sz} = -\frac{\hbar}{2e} (\mathbf{j}_\uparrow - \mathbf{j}_\downarrow) \quad (1.2.7)$$

と表せる。このように伝導電子スピン流の場合は、アップスピン電子流とダウンスピン電子流の差をスピン流と定義することができる。

<sup>\*2</sup> ハイゼンベルグの運動方程式は、 $\dot{A} = (i/\hbar)[H, A]$ ,  $([X, Y] \equiv (XY - YX))$  と表すことができる。

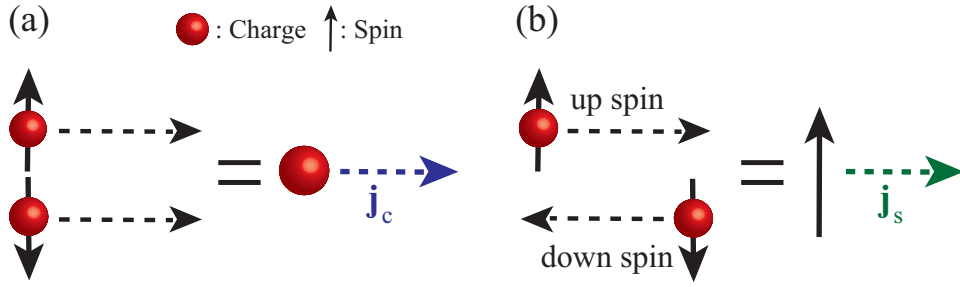


図 1.1 (a) 電流  $\mathbf{j}_c$  の模式図。電流はランダムなスピンをもつ電荷の流れであり、全体ではスピン偏極していない。(b) 伝導電子スピン流  $\mathbf{j}_s$  の模式図。アップスピンをもつ電子とダウンスピンをもつ電子が互いに逆向きに流れており、電荷としての流れは打ち消されるが、スピンとしての流れは残る。

### 1.2.3 スピン流の拡散方程式

金属のような伝導体におけるスピン流は、前述のように伝導電子によって支配される。ここでは、古典拡散領域におけるスピン流の振る舞いについて記述する。スピン  $\sigma(\uparrow, \downarrow)$  を有する電子流密度  $\mathbf{j}_\sigma$  は、

$$\mathbf{j}_\sigma = \mathbf{j}_\sigma^{\text{Drift}} + \mathbf{j}_\sigma^{\text{Diffusion}} = \sigma_\sigma \mathbf{E} + e D_\sigma \nabla \delta n_\sigma \quad (1.2.8)$$

のように電場  $\mathbf{E} = -\nabla\phi$  ( $\phi$  は静電ポテンシャル) によって駆動されるドリフト項  $\mathbf{j}_\sigma^{\text{Drift}}$  と、電子の濃度勾配によって駆動される拡散項  $\mathbf{j}_\sigma^{\text{Diffusion}}$  の和によって表現される。ここで、 $\sigma_\sigma$ 、 $D_\sigma$  はスピン  $\sigma$  をもつ電気伝導度及び拡散係数であり、 $\delta n_\sigma \equiv n_\sigma - \bar{n}_\sigma$  はスピン  $\sigma$  をもった電子数密度  $n_\sigma$  の平衡状態の平均値  $\bar{n}_\sigma$  からの電子数密度の変化を表している。 $\delta n_\sigma$  より、化学ポテンシャル  $\mu_\sigma^c$  は  $\mu_\sigma^c = \delta n_\sigma / N_\sigma(E_F)$  ( $N_\sigma(E_F)$  はフェルミエネルギーにおけるスピン依存の状態密度) と記述できる。ここでアインシュタインの関係式 ( $\sigma_\sigma = e^2 N_\sigma(E_F) D_\sigma$ ) を用いると、(1.2.8) 式は、

$$\mathbf{j}_\sigma = -\frac{\sigma_\sigma}{e} \left[ e \nabla \phi - \frac{\nabla \delta n_\sigma}{N_\sigma(E_F)} \right] \quad (1.2.9)$$

と表すことができる。さらに電気化学ポテンシャル  $\mu_\sigma = -e\phi + \mu_\sigma^c$  を導入することにより、(1.2.9) 式は

$$\mathbf{j}_\sigma = \frac{\sigma_\sigma}{e} \nabla \mu_\sigma \quad (1.2.10)$$

と記述することができる。したがって (1.2.6) 式、(1.2.7) 式及び (1.2.10) 式より古典拡散領域における電流及びスピン流はそれぞれ

$$\mathbf{j}_c = \frac{1}{e} \nabla (\sigma_{\uparrow} \mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow} \mu_{\downarrow}) \quad (1.2.11)$$

$$\mathbf{j}_s = \frac{\hbar}{2e^2} \nabla (\sigma_{\uparrow} \mu_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow} \mu_{\downarrow}) \quad (1.2.12)$$

と表せる。(1.2.11) 式、(1.2.12) 式から理解できるように、電流は  $\mu$  そのものが駆動源になっているのに対し、スピン流はスピン依存の電気化学ポテンシャル  $\mu_{\uparrow}$  と  $\mu_{\downarrow}$  の差の勾配が駆動源になっていることがわかる。

ここで平衡状態では、電荷の連続方程式

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_{\uparrow} + \mathbf{j}_{\downarrow}) = 0 \quad (1.2.13)$$

を満たす。しかし、 $\mathbf{j}_{\uparrow}, \mathbf{j}_{\downarrow}$  自体は保存流ではないので、連続の式は

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_{\uparrow}}{\partial t} &= -\nabla \cdot \mathbf{j}_{\uparrow} - \frac{\delta n_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} + \frac{\delta n_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \\ \frac{\partial n_{\downarrow}}{\partial t} &= -\nabla \cdot \mathbf{j}_{\downarrow} + \frac{\delta n_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} - \frac{\delta n_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \end{aligned} \quad (1.2.14)$$

となる。ここで、 $\tau_{\uparrow\downarrow}(\tau_{\downarrow\uparrow})$  はアップスピン (ダウンスピン) の電子がダウンスピン (アップスピン) に反転するまでの時間を表している。ここで (1.2.14) 式を用いると、

$$\frac{\partial}{\partial t} (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) = -\nabla \cdot (\mathbf{j}_{\uparrow} - \mathbf{j}_{\downarrow}) - 2 \left[ \left( \frac{N_{\uparrow}(E_F) \mu_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} - \frac{N_{\downarrow}(E_F) \mu_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \right) + \left( \frac{N_{\uparrow}(E_F)}{\tau_{\uparrow\downarrow}} - \frac{N_{\downarrow}(E_F)}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \right) e\phi \right] \quad (1.2.15)$$

となる。(1.2.15) 式に (1.2.12) 式を代入し、詳細釣り合い ( $N_{\uparrow}(E_F)/\tau_{\uparrow\downarrow} \equiv N_{\downarrow}(E_F)/\tau_{\downarrow\uparrow}$ ) を仮定することにより、

$$\frac{\partial}{\partial t} (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) = \frac{1}{e^2} \left[ \sigma_{\uparrow} \nabla^2 \mu_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow} \nabla^2 \mu_{\downarrow} - 2 \frac{\sigma_{\uparrow}}{D\tau_{\uparrow\downarrow}} (\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) \right] \quad (1.2.16)$$

となる。また、 $D_{\uparrow} = D_{\downarrow} = D, \nabla \sigma_{\uparrow(\downarrow)} = 0$  を仮定した。

ここで  $n_{\uparrow} - n_{\downarrow}$  の定常状態について考えてみる [すなわち式 (1.2.16)=0]。(1.2.13) 式に、(1.2.11) 式を代入することによって、

$$\nabla^2 (\sigma_{\uparrow} \mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow} \mu_{\downarrow}) = 0 \quad (1.2.17)$$

と置き換えることができる。(1.2.17) 式及び (1.2.16) 式を用いると、スピン蓄積  $\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}$  の分布を表す拡散方程式

$$\nabla^2(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) = \frac{1}{\lambda_{\text{sf}}^2}(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) \quad (1.2.18)$$

が得られる [11]。  $\lambda_{\text{sf}}$  はスピン拡散長であり、有効緩和時間  $\tau_{\text{sf}} = \frac{1}{2}(\tau_{\uparrow\downarrow}^{-1} + \tau_{\downarrow\uparrow}^{-1})$  を用いて、  $\lambda_{\text{sf}} \equiv \sqrt{D\tau_{\text{sf}}}$  と定義される。スピン拡散長はスピン流が消失するまでの長さの目安であり、物質固有のパラメーターである。伝導電子スピン流の場合は、長くともスピン拡散長は  $\mu\text{m}$  オーダーである。古典拡散領域で記述可能なスピン流の分布は (1.2.18) 式を用いて境界条件を指定すれば、求めることができる (第3章参照)。

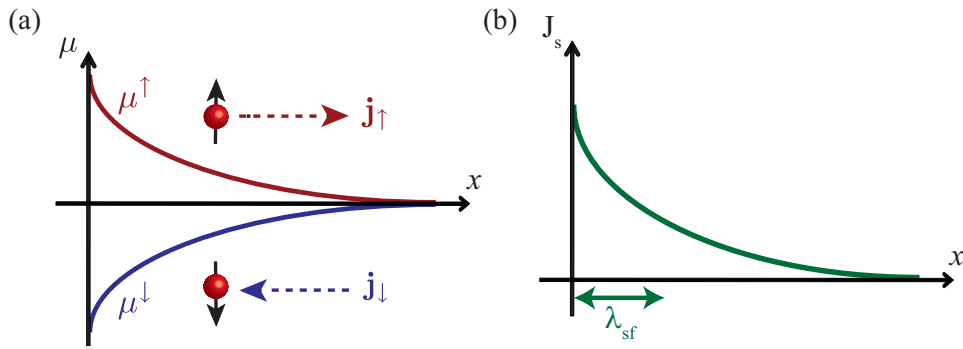


図 1.2 (a) アップスピンとダウンスピンそれぞれの電気化学ポテンシャルの空間分布の模式図。スピン蓄積  $\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}$  がスピン流の駆動源となる。(b) 伝導電子スピン流の空間分布の模式図。スピン拡散長  $\lambda_{\text{sf}}$  はスピン流が消失するまでの長さの目安である。

#### 1.2.4 スピン波

従来までは、伝導電子が媒介するスピン流について主に研究が行われてきたが、電子が自由に運動できない絶縁体でもスピン波を介することによって、スピン流を伝搬できることが発見された。スピン波スピン流について記述するにあたって、この節ではスピン波について言及する。

磁性体中のスピンの一斉に同じ向きに歳差運動を行なっているときに、一つのスピンの他のスピンとの間に位相のずれが生じると、隣のスピンは交換相互作用によって平行状態に戻そうと作用する。しかし、このずれは隣から隣へと伝わっていき、波うったスピンの配列ができる。このような波をスピン波と呼び、磁氣的秩序を持つ系で発現する。スピン波はマグノンとよばれるボゾンの準粒子として記述される。スピン波について、規格化し



た磁気モーメントベクトル  $\mathbf{m}$  に対する運動方程式

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \quad (1.2.19)$$

を用いて考察してみる。 $\gamma$  はジャイロ磁気定数であり、(1.2.19) 式は交換相互作用による有効磁場  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  を軸に、 $\mathbf{m}$  が歳差運動を行うことを表している。ここで、 $i$  番目のサイトに磁気モーメントが一つずつ存在している系を考える。磁気モーメント間に交換相互作用

$$E_i^{\text{ex}} = -J \sum_j \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j \quad (1.2.20)$$

が働くとする (和は最隣接サイトのみ行う)、 $\mathbf{m}_i$  に対する有効磁場は、 $\mathbf{H}_{\text{eff}} = -J \sum_j \mathbf{m}_j$  となる ( $J$  は交換積分)。隣接している磁気モーメントが互いに平行から少しずれた状態のときに、 $i$  番目のサイトの位置を  $\mathbf{r}_i$  と定義すると、隣接している  $\mathbf{m}$  の和は、 $\sum_j \mathbf{m}_j = \sum_j \mathbf{m}(\mathbf{r}_i + \mathbf{a}_j)$  となる。 $\mathbf{a}_j$  は、 $i$  と  $j$  サイトの間の相対的な位置ベクトルである。ここで最隣接格子数が6つである立方晶の場合を考えてみる。このとき、最隣接磁気モーメントの和は、

$$\begin{aligned} \sum_j \mathbf{m}(\mathbf{r}_i + \mathbf{a}_j) &= \mathbf{m}(\mathbf{r}_i + a\mathbf{x}) + \mathbf{m}(\mathbf{r}_i - a\mathbf{x}) + \mathbf{m}(\mathbf{r}_i + a\mathbf{y}) + \mathbf{m}(\mathbf{r}_i - a\mathbf{y}) \\ &\quad + \mathbf{m}(\mathbf{r}_i + a\mathbf{z}) + \mathbf{m}(\mathbf{r}_i - a\mathbf{z}) \end{aligned} \quad (1.2.21)$$

と置き換えられる ( $|\mathbf{a}_j| \equiv a$ )。ここで、隣接している磁気モーメントの傾き角が変わっていないと仮定する。たとえば  $x$  成分を連続体近似で展開し、3階微分より高次の成分は無視すると、 $\mathbf{m}(\mathbf{r}_i)$  の2階微分は、

$$\frac{\partial^2 \mathbf{m}(\mathbf{r}_i)}{\partial x^2} \approx \frac{1}{a^2} [\mathbf{m}(\mathbf{r}_i + a\mathbf{x}) - 2\mathbf{m}(\mathbf{r}_i) + \mathbf{m}(\mathbf{r}_i - a\mathbf{x})] \quad (1.2.22)$$

と書ける。(1.2.22) 式の結果を使うと、(1.2.21) 式は、

$$\begin{aligned} \sum_j \mathbf{m}(\mathbf{r}_i + \mathbf{a}_j) &\approx a^2 \left[ \frac{\partial^2 \mathbf{m}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{m}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{m}}{\partial z^2} \right]_{\mathbf{r}=\mathbf{r}_i} + 6\mathbf{m}(\mathbf{r}_i) \\ &= a^2 \nabla^2 \mathbf{m}(\mathbf{r}_i) + 6\mathbf{m}(\mathbf{r}_i) \end{aligned} \quad (1.2.23)$$

となる。(1.2.23) 式を (1.2.19) 式に代入すると、(1.2.19) 式は

$$\frac{d\mathbf{m}(\mathbf{r})}{dt} = -\gamma J a^2 \mathbf{m}(\mathbf{r}) \times \nabla^2 \mathbf{m}(\mathbf{r}) \equiv -\gamma A \mathbf{m}(\mathbf{r}) \times \nabla^2 \mathbf{m}(\mathbf{r}) \quad (1.2.24)$$

と表される ( $A$ : 交換スティフネス係数)。(1.2.24) 式に (1.2.19) 式のジャイロ回転項  $-\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}$  を加えたものがスピン波の運動方程式である。このように主に交換相互作用に起因して発生するスピン波を交換スピン波とよぶ。交換スピン波はスピン波の波長が短いときに支配的に働く。逆にスピン波の波長が長くなると、交換相互作用だけでなく、スピン間のここでは無視した磁気双極子相互作用の寄与が大きくなる。このようなスピン波を静磁波とよぶ。本研究で用いるマイクロ波の周波数領域では、交換スピン波の観測を行うことは通常できないが、量子化されたスピン波であるマグノンの緩和・分裂過程を利用すれば、交換スピン波を生成することができる。

マグノンの生成・消滅の過程としては、波数  $\mathbf{k}$  が 0 である一様歳差運動からマグノン ( $\mathbf{k} \neq 0$ ) に遷移させるプロセスが挙げられる。代表的なものとしては、2 マグノン過程、3 マグノン過程がある。2 マグノン過程は、系の並進対称性は保たれないときに、一様歳差運動と比較して、エネルギーは保存するが、 $\mathbf{k}$  は保存しないプロセスである。これは結晶欠陥や不純物があるときに起こりやすい過程である。それに対して 3 マグノン過程は、 $\mathbf{k} = 0$  のマグノンが 2 つのマグノンに分裂する過程である。このとき、エネルギー及び  $\mathbf{k}$  は保存されるが、スピン角運動量は保存されない。これらの散乱過程を通じて、交換スピン波の生成が可能となっている。

交換相互作用に起因する交換スピン波だけでなく、磁気双極子相互作用が支配的な静磁スピン波もある。磁気双極子相互作用とは、2 つの磁気モーメント間に働く相互作用を表しており、一方の磁気モーメントが作り出す磁場によって、もう一方の磁気モーメントに及ぼす力である。そのポテンシャルエネルギー  $U_{12}$  は、 $\mathbf{r}$  離れている磁気モーメント  $\mathbf{m}_1$ 、 $\mathbf{m}_2$  から、

$$U_{12} = -\frac{\mu_0}{4\pi} \left[ \frac{3(\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{r})(\mathbf{m}_2 \cdot \mathbf{r})}{r^5} - \frac{(\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{m}_2)}{r^3} \right] \quad (1.2.25)$$

となる。ここで  $\mu_0$  は真空の透磁率を表す。

静磁スピン波は交換スピン波と同様に、磁性薄膜に直流磁場  $\mathbf{H}$  及び高周波磁場を印加することにより作り出すことができる。このとき波の伝搬方向  $\mathbf{k}$  と磁場  $\mathbf{H}$  の印加方向の配置に応じて、3 種類の静磁波が発生する。

一つ目の静磁波は膜面に垂直で  $\mathbf{k}$  にも垂直な方向に  $\mathbf{H}$  を印加したときに発生する体積

前進静磁波 (Forward volume magnetostatic spin wave: FVMSW) である。二つ目は膜面に平行で  $\mathbf{k}$  にも平行な方向に  $\mathbf{H}$  を印加したときに発生する体積後進静磁波 (Backward volume magnetostatic spin wave: BVMSW) である。三つ目は膜面に平行で  $\mathbf{k}$  に垂直な方向に  $\mathbf{H}$  を印加したときに発生する表面静磁波 (Magnetostatic surface spin wave: MSSW) である。これら3種類の静磁波は、磁化の歳差運動の周波数  $\omega$  と静磁波の波数  $k$  との間に別々の分散関係をもつ。FVMSW は群速度と位相速度が同じ方向に向かっているのに対し、BVMSW は逆方向となっている。MSSW は試料の表面で静磁波が一方向だけに伝搬することができ、試料端で反射を行うことができない。そして、FVMSW 及び BVMSW は、静磁波のエネルギーが試料全体に分布しているのに対し、MSSW は試料の表面に静磁波のエネルギーが集中している。

### 1.2.5 スピン波スピン流と交換スピン流

磁性絶縁体では、伝導電子は運動を行うことはできないが、スピン波を用いてスピン角運動量を運搬するスピン流を発生させることができる (図 1.3 (a))。これは磁性体の集団励起モードであるマグノンがスピン流のキャリアとなっているからである。

(1.2.24) 式を展開すると、

$$\frac{d\mathbf{m}(\mathbf{r})}{dt} = -\nabla \cdot (A\gamma\mathbf{m}(\mathbf{r}) \times \nabla\mathbf{m}(\mathbf{r})) + \boldsymbol{\tau} \quad (1.2.26)$$

となる。ここで  $d\mathbf{m}(\mathbf{r})/dt = 0$  でないと平衡状態ではなくなるので、(1.2.26) 式の右辺第2項にノンコリニアな磁化状態による寄与  $\boldsymbol{\tau}$  を付け足した。(1.2.26) 式の  $(A\mathbf{m}(\mathbf{r}) \times \nabla\mathbf{m}(\mathbf{r}))$  を  $\mathbf{j}_s$  とすれば、磁化の連続方程式である (1.2.1) 式と同じ形をしていることがわかる。これは、磁気モーメントのねじれが駆動力となって、スピン流が流れることを示している。これは超伝導体の巨視的な波動関数にねじれがあるときにジョセフソン電流が流れるのと同様である。このことは量子力学を用いた微視的な観点からも理解できる。スピン演算子の交換関係を用いて、ノンコリニアな磁化状態がスピン流によって変換されることを説明する [13]。スピン間の交換関係は

$$[s^\alpha, s^\beta] = i\hbar\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}s^\gamma \quad (1.2.27)$$

となる ( $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$ : Levi-Civita の完全反対称テンソル) が、この交換関係は

$$[s^z, s^\pm] = \pm i\hbar s^\pm \quad (1.2.28)$$

と変換できる ( $s^\pm = s^x \pm is^y$ )。ここで量子化軸  $s^z$  と  $s^x - s^y$  平面内のスピンのなす角度  $\theta$  を用いると、 $s^\pm \sim e^{\pm i\theta}$  となる。そして交換関係

$$[s^z, \theta] = i\hbar \quad (1.2.29)$$

が導かれる。これはボゾン場におけるボゾンの粒子数  $n$  と波動関数の位相  $\varphi$  の間の交換関係  $[n, \varphi] = i\hbar$  に対応する (図 1.3 (b))。よって隣同士のサイト  $i, j$  においてスピンの方位角が  $\theta_i, \theta_j$  と異なると、角度差に対応したスピン流が流れているとみなせる (図 1.3 (c))。これが超伝導電流に対応した交換スピン流となっている。

交換相互作用は、2つのスピンが交換スピン流を交換し合う描像で捉えることができるが、それは次のように理解できる。 $\mathbf{s}_i, \mathbf{s}_j$  に以下のハミルトニアン  $H$  のように交換相互作用が働いているとする。

$$H = -J\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j = -\frac{J}{2} \left( s_i^+ s_j^- + s_i^- s_j^+ \right) - Js_i^z s_j^z \quad (1.2.30)$$

(1.2.30) 式を用いてハイゼンベルグの運動方程式  $\dot{\mathbf{s}}_i = -\frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{s}_i]$  を計算すると

$$\dot{\mathbf{s}}_i = \frac{J}{\hbar} \mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j \equiv \mathbf{j}_{j \rightarrow i} \quad (1.2.31)$$

となり、 $\mathbf{s}_i$  と  $\mathbf{s}_j$  の外積成分が含まれることがわかる。また  $\mathbf{j}_{j \rightarrow i}$  はサイト  $j$  からサイト  $i$  に流れるスピン流である。また同様にサイト  $i$  からサイト  $j$  へもスピン流  $\mathbf{j}_{i \rightarrow j} = -\mathbf{j}_{j \rightarrow i}$  が流れている。これは (1.2.3) 式右辺の第1項に他ならない。

また位相差に応じスピン流が存在するモデルは、以下のように考えることができる [14]。 $\mathbf{s}$  の量子化軸を  $z$  軸方向に固定して考え、 $\mathbf{s}$  の方位角を  $\theta$  とする (図 1.3 (c))。 $\mathbf{s}_i$  と  $\mathbf{s}_j$  のそれぞれの  $x, y, z$  成分は  $\mathbf{s}_i = s^z(\cos \theta_i, \sin \theta_i, 0)$ 、 $\mathbf{s}_j = s^z(\cos \theta_j, \sin \theta_j, 0)$  となる。ここで (1.2.31) 式から  $\mathbf{j}_{j \rightarrow i}$  の  $z$  成分  $\mathbf{j}_{j \rightarrow i}^z$  を求めると、 $\mathbf{j}_{j \rightarrow i}^z = -(s^z)^2 \sin(\theta_i - \theta_j)$  という形に表せる。よって  $\mathbf{j}_{j \rightarrow i}$  は2つサイト  $\mathbf{s}_i$  と  $\mathbf{s}_j$  の角度差が駆動力になっていることが理解できる。

このようにスピン間の角度差によって駆動されるスピン流を交換スピン流とよぶ。交換スピン流を  $\mathbf{m}$  の集団励起による非平衡状態から作り出したものがスピン波スピン流であ

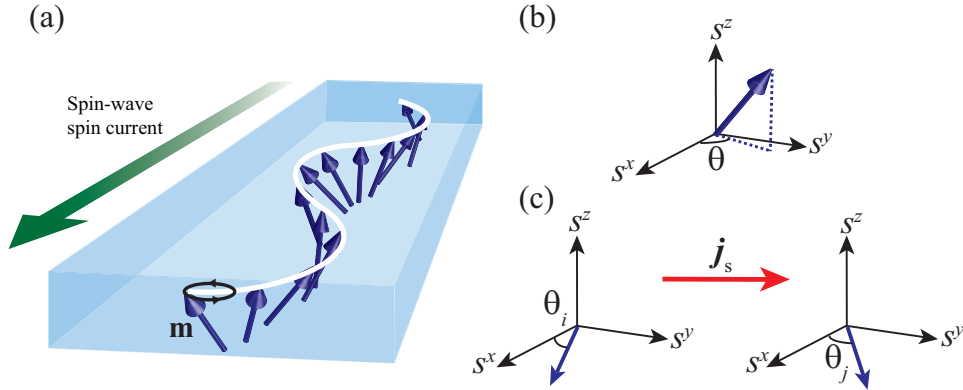


図 1.3 (a) スピン波スピン流の模式図。磁気モーメント  $\mathbf{m}$  の集団励起モード (マグノン) がスピン角運動量を伝搬している。(b) スピンの  $z$  成分  $s^z$  と  $s^x - s^y$  平面内のスピンのなす角度  $\theta$  の関係図。(c) 隣り合ったスピン  $i, j$  において方位角  $\theta_i, \theta_j$  が異なると、角度差に応じたスピン流  $\mathbf{j}_s$  が流れる。

る。スピン波スピン流は (1.2.24) 式に (1.2.19) 式を加えた方程式

$$\frac{\partial \mathbf{m}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H}_0 - \frac{A}{\hbar M_s} \mathbf{m} \times \nabla^2 \mathbf{m} \quad (1.2.32)$$

で記述することができる。ここで  $M_s$  は飽和磁化、 $\mathbf{H}_0 = (0, 0, H_0)$  は  $z$  方向に印加した有効磁場 (交換相互作用による有効磁場は除く)、 $A$  は交換スティフネス係数である。

(1.2.32) 式を

$$\frac{\partial \mathbf{m}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H}_0 - \gamma \nabla \cdot \mathbf{J}_i^{M_\alpha} \quad (1.2.33)$$

と置き換えた際の  $\mathbf{J}_i^{M_\alpha} = \mathbf{j}_i^{M_\alpha}$  がスピン波スピン流であり、成分表示すると、

$$J_i^{M_\alpha} = \frac{A}{\hbar \gamma M_s} [\mathbf{m} \times \nabla_i \mathbf{m}]_\alpha = \frac{A}{\hbar \gamma M_s} \varepsilon_{\alpha\mu\nu} m_\mu \nabla_i m_\nu \quad (1.2.34)$$

となる ( $i$ : 空間成分、 $\alpha$ : スピン成分、 $\varepsilon_{\alpha\mu\nu}$ : Levi-Civita の完全反対称テンソル)。ここで (1.2.34) 式の  $z$  成分を抽出すると、(1.2.1) 式のスピンの連続方程式が得られる。

(1.2.32) 式から交換スピン波の分散関係  $\hbar \omega_k = \hbar \gamma H_0 + A k^2$  及び解  $\psi(\mathbf{r}, t) = m_+(\mathbf{r}, t) = m_x(\mathbf{r}, t) + i m_y(\mathbf{r}, t) \propto \exp(i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + i \omega_k t)$  が得られる。 $\psi(\mathbf{r}, t)$  及びその複素共役  $\psi^*(\mathbf{r}, t)$  により、(1.2.34) 式の  $z$  成分は、

$$J^{M_z} = \frac{1}{2i} \frac{A}{\hbar \gamma M_s} [\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^*] \quad (1.2.35)$$

と記述できる。エネルギー  $\omega_k$  と波数  $k$  を持ったスピン波励起の生成消滅演算子 ( $b_k^\dagger, b_k$ ) を  $\psi = m_+ = \sqrt{2\hbar\gamma M_s} \sum_k b_k \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ 、 $\psi^* = m_- = \sqrt{2\hbar\gamma M_s} \sum_k b_k^\dagger \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$  とすると、スピン波スピン流の  $z$  成分は

$$\mathbf{J}^{M_z} = \hbar \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}} \quad (1.2.36)$$

という形で得られる。ここで  $\mathbf{v}_{\mathbf{k}} = \partial\omega_{\mathbf{k}}/\partial\mathbf{k} = 2(A/\hbar)\mathbf{k}$  はスピン波の群速度であり、 $f_{\mathbf{k}} = \langle b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}} \rangle$  はスピン波の分布関数である。(1.2.36) 式から、波数  $\mathbf{k}$  をもつスピン波と波数  $-\mathbf{k}$  をもつスピン波の分布関数が異なるときに、スピン波は進行波となり、スピン角運動量を伝搬するスピン流となることがわかる (図 1.4 (b)) [57]。また、波数  $\mathbf{k}$  をもつスピン波と、波数  $-\mathbf{k}$  をもつスピン波分布関数の大きさが同じときには定在波が発生してスピン角運動量を伝搬することはできない (図 1.4 (a))。スピン波スピン流を用いて多くの興味深い研究が行われている [15, 16, 57, 71]。

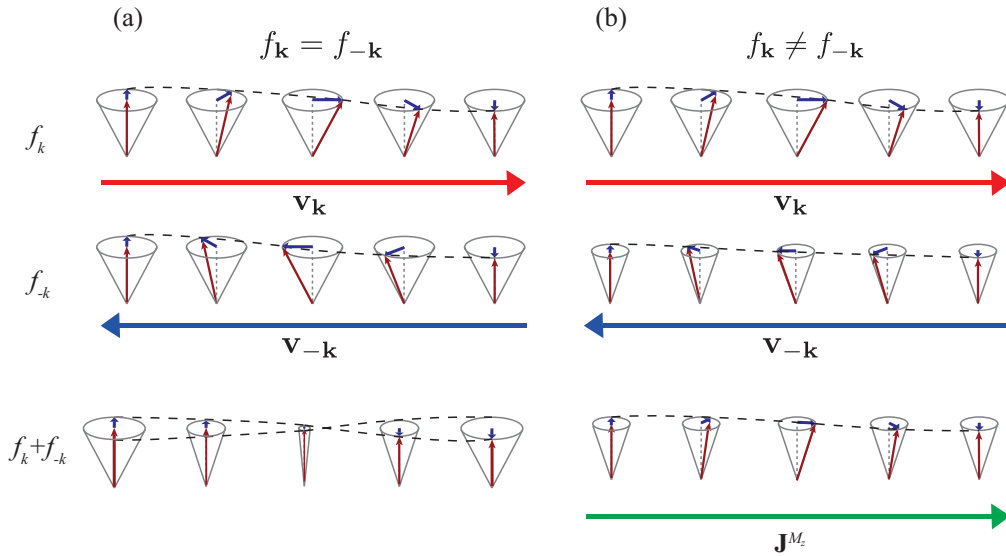


図 1.4 スピン波の模式図。(a) 波数  $\mathbf{k}$  をもつスピン波と、波数  $-\mathbf{k}$  をもつスピン波分布関数の大きさが同じときに、合成したスピン波は定在波となる。(b) 波数  $\mathbf{k}$  をもつスピン波と波数  $-\mathbf{k}$  をもつスピン波の分布関数が異なるときに、合成したスピン波は進行波となる。

## 1.3 磁化ダイナミクス-スピン流相互作用

### 1.3.1 スピン移行トルクと Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式

スピン流はスピン角運動量の流れであることから、動的な磁化との相互作用を引き起こす。これは (1.2.1) 式からも理解することができる。1996 年に Berger は強磁性体と常磁性体が交互に並んだ多層膜において、スピン偏極電流を用いることによって強磁性体の磁化を変調できることを理論的に示した [17]。よって磁場を介さなくても、電流を利用することにより、磁化の向きを制御できることが可能であることを示した。このようなスピン流と磁化の間のスピン角運動量の受け渡しをスピン移行トルクとよぶ。このとき電流から磁化へとスピン角運動量を受け渡すことによって、磁化方向制御を可能にした。実験的にも 1999 年にも Myers らによってスピン偏極電流による磁化反転が実現された [6]。

このように磁化の動的な性質が、スピン流と磁化との間にスピン角運動量の交換を実現させていることが理解できる。スピン流と磁化の相間について理解するには、動的な磁化の性質について知る必要がある。そのためにまず静磁場  $\mathbf{H}$  中に配置された磁化に平行な規格化ベクトル  $\mathbf{m}$  について考察する。前に述べた (1.2.19) 式にあるように磁化は磁場の周りで歳差運動を行う。しかしこの場合、どんな強い磁場を与えても、磁化は磁場軸周りで回転運動を行うだけになってしまい、実験事実に合わなくなってしまう。そこで、現象論的に緩和を表す項を足す必要があり、それは (1.2.19) 式に減衰を表す項を足した LLG(Landau-Lifshitz-Gilbert) 方程式を用いることによって解消する。この方程式は、

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H} + \frac{\alpha}{M_s} \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (1.3.1)$$

によって記述される。ここで、 $M_s$  は飽和磁化、 $\alpha$  は Gilbert 緩和定数である。ここで磁化に働くトルクには一般的に 2 種類あることを述べる。トルクの定義から、トルクは磁化  $\mathbf{m}$  に垂直な方向のベクトル量である。ここで全てのトルクは  $\frac{d\mathbf{m}}{dt}$  と  $\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt}$  のベクトルが張る二次元平面内に収まる。

### 1.3.2 強磁性体/常磁性金属二層膜におけるスピン移行トルク

強磁性体/常磁性金属界面におけるスピン角運動量の受け渡しに関しては、Brataas らのスピン回路理論によって考察されている [18]。図 1.5 (a) のような強磁性体/常磁性金属二層膜において、強磁性体側に電圧が印加されているモデルを構築し、常磁性金属にスピン蓄積があることにより生じるスピン移行トルクについて考察する。電圧は強磁性体側に印加されているので、電子は常磁性金属側から流れる。強磁性体の電荷に対する電圧を  $V_F^{(c)}$  とし、強磁性体の磁化によるスピン蓄積は、磁化に平行な規格化したベクトル  $\mathbf{m}$  を用いて、 $\mathbf{V}_F^{(s)} = \mathbf{m}V_F^{(s)}$  とおく。同じような考え方で常磁性金属の電荷に対する電圧を  $V_N^{(c)}$  とし、スピン蓄積のために生じる  $V_N^{(c)}$  からの電位差を  $\mathbf{V}_N^{(s)}$  とベクトル量で表す ( $\mathbf{m}$  と同じ方向とは限らない)。常磁性金属内で  $\mathbf{V}_N^{(s)}$  に平行、反平行な成分  $\uparrow, \downarrow$  のスピンをもつ電子が感じる電圧  $V_N^\uparrow, V_N^\downarrow$  はそれぞれ  $V_N^\uparrow = V_N^{(c)} + V_N^{(s)}$ 、 $V_N^\downarrow = V_N^{(c)} - V_N^{(s)}$  となる。同じく強磁性体内で  $\mathbf{m}$  に平行、反平行な成分  $\uparrow, \downarrow$  のスピンをもつ電圧はそれぞれ  $V_F^\uparrow = V_F^{(c)} + V_F^{(s)}$ 、 $V_F^\downarrow = V_F^{(c)} - V_F^{(s)}$  となる。 $\mathbf{m}$  に平行、反平行な成分の電流  $I_\uparrow, I_\downarrow$  はオームの法則に従うとみなして、強磁性体と常磁性金属の電位差とコンダクタンスの積に等しいとする。そして  $I^\uparrow, I^\downarrow$  を  $\mathbf{V}_N^{(s)}$  の  $\mathbf{m}$  への射影を用いて求めると、

$$\begin{aligned} I^\uparrow &= g^\uparrow \left[ \left( V_N^{(c)} - V_F^{(c)} \right) + \mathbf{m} \cdot \left( \mathbf{V}_N^{(s)} - \mathbf{m}V_F^{(c)} \right) \right] \\ I^\downarrow &= g^\downarrow \left[ \left( V_N^{(c)} - V_F^{(c)} \right) - \mathbf{m} \cdot \left( \mathbf{V}_N^{(s)} - \mathbf{m}V_F^{(c)} \right) \right] \end{aligned} \quad (1.3.2)$$

となる。ここで  $g^\uparrow, g^\downarrow$  はスピンに依存する界面のコンダクタンスで、電流  $I^{(c)} = I^\uparrow + I^\downarrow$  は界面で連続である。縦スピン流を  $(I^\uparrow - I^\downarrow)\mathbf{m}$  と定義し、それに対し横スピン流を  $\mathbf{m}$  に直交するベクトルで表すと、

$$-2g_r^{\uparrow\downarrow}\mathbf{m} \times \left( \mathbf{m} \times \mathbf{V}_N^{(s)} \right) - 2g_i^{\uparrow\downarrow} \left( \mathbf{m} \times \mathbf{V}_N^{(s)} \right) \quad (1.3.3)$$

とおける。 $g_r^{\uparrow\downarrow}, g_i^{\uparrow\downarrow}$  はそれぞれ独立な界面コンダクタンスで、スピンミキシングコンダクタンス  $g^{\uparrow\downarrow}$  の実部と虚部として定義される ( $g^{\uparrow\downarrow} = g_r^{\uparrow\downarrow} + ig_i^{\uparrow\downarrow}$ )。今までの結果から常磁性金属側の全スピン流  $I_N$  は

$$I_N = (I^\uparrow - I^\downarrow)\mathbf{m} - 2g_r^{\uparrow\downarrow}\mathbf{m} \times \left( \mathbf{m} \times \mathbf{V}_N^{(s)} \right) - 2g_i^{\uparrow\downarrow} \left( \mathbf{m} \times \mathbf{V}_N^{(s)} \right) \quad (1.3.4)$$



となる。

### 1.3.3 スピンポンピングによるスピン流生成

ここで、スピン流により磁化歳差運動が誘起される過程の逆、すなわち磁化動的運動によってスピン流が誘起される過程を考えてみる。強磁性体/常磁性体複合膜において、強磁性体の磁化歳差運動を励起した場合を考えてみる (図 1.5 (b))。 (1.3.1) 式の LLG 方程式によると、磁化の歳差運動はいずれ緩和してしまい、磁場方向に最終的には向いてしまうはずである。このとき、歳差運動を行う磁化が失ったスピン角運動量の一部は伝導電子スピンの受け渡され、これがスピン流として隣接している常磁性層に注入される。これがスピンポンピングとよばれる現象である。スピンポンピングは Tserkovnyak らによって提唱された現象である [19]。Tserkovnyak らは常磁性金属/強磁性金属複合膜を用いた強磁性共鳴の実験において観測された Gilbert 緩和定数の増大の原因を、スピンポンピングによるスピン流生成によるものとした。このとき、散乱理論を用いて、磁化歳差運動により生成されるスピン流量を計算した。

強磁性体/常磁性体複合膜において、スピンポンピングにより常磁性金属側で生成されるスピン流  $\mathbf{J}_s^{\text{pump}}$  は

$$\mathbf{J}_s^{\text{pump}} = g_r^{\uparrow\downarrow} \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) + g_i^{\uparrow\downarrow} \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (1.3.5)$$

のように記述される。(1.3.5) 式の第 1 項は LLG 方程式の緩和項と同じ依存性を示し、第 2 項は系に対し有効磁場のように働く。通常は  $g_r^{\uparrow\downarrow} \gg g_i^{\uparrow\downarrow}$  であり、(1.3.5) 式の第 1 項がスピンポンピングによって強磁性体の磁化歳差運動により生成れるスピン流の表式となっている。

## 1.4 スピンホール効果

### 1.4.1 スピンホール効果と逆スピンホール効果

スピンホール効果とは、物質中で電流を印加したときに、電流と垂直な方向にスピン流が生じる現象である。この現象は物質中のスピン軌道相互作用に起因する。まず、常磁性伝導体に電流を印加した場合を考えてみよう。常磁性伝導体の内部では、アップスピンとダウンスピンがスピン軌道相互作用によりそれぞれ逆向きに曲げられてしまう。これは、

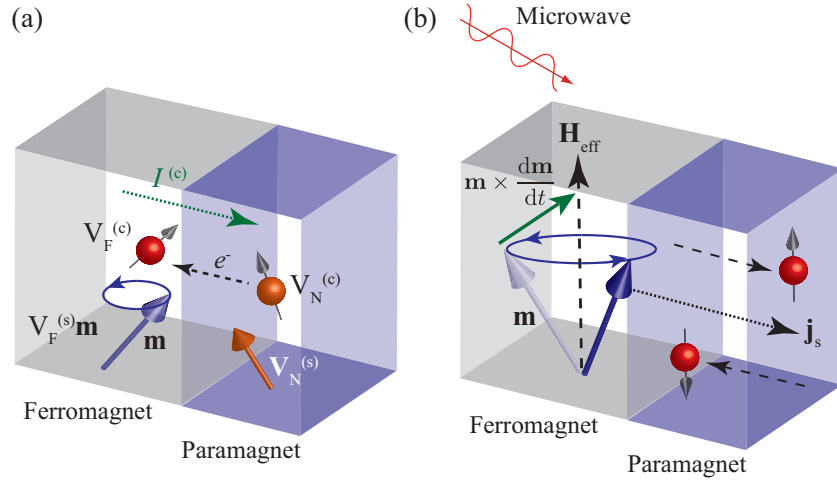


図 1.5 (a) 強磁性体/常磁性体複合構造におけるスピン移行トルクの模式図。 (b) 強磁性体/常磁性体複合構造におけるスピンプンピングの模式図。

電子スピンの偏極方向  $\sigma$ 、電流方向  $\mathbf{j}_c$  と直交する方向に純スピン流  $\mathbf{j}_s$  が誘起されることを示している。

$$\mathbf{j}_s \parallel \mathbf{j}_c \times \sigma \quad (1.4.1)$$

スピンホール効果は 1971 年に Dyakonov らにとって初めて提唱された [20]。実験的には、2004、2005 年にそれぞれ Kato ら、Wunderlich らによって独立にその効果が発見された (図 1.6(a)) [21, 22]。スピン流は時間反転対称性を有するため、試料に磁場を印加しなくとも (時間反転対称性を破らなくとも)、スピンホール効果が生じることがわかる。印加した電流と生成されたスピン流の間の変換効率率はスピンホール角  $\theta_{\text{SHE}} = \sigma_{xy}/\sigma_{xx}$  で表すことができる。ここで  $\sigma_{xx}$  は電気伝導率、 $\sigma_{xy}$  はスピンホール伝導率を示している。

電流がそれと直交方向にスピン流を生むと、逆にスピン流がそれと直交方向に電流を作り出すというシナリオが考えられる。すなわち常磁性伝導体中にスピン流が注入されると、

$$\mathbf{j}_c \parallel \mathbf{j}_s \times \sigma \quad (1.4.2)$$

の対称性を満たす方向に電流が生じるはずである。この現象を逆スピンホール効果とよぶ (図 1.6(b))。これは 2006 年に Saitoh ら [23]、Valenzuela ら [24] によって、それぞれスピンプンピングや非局所測定を用いることにより発見された。この現象を利用することによって、スピン流を電氣的に検出することが可能になるので、スピントロニクスとエレクトロニクスの融合が期待される。

トロニクスへの架け橋となる重要な現象である。

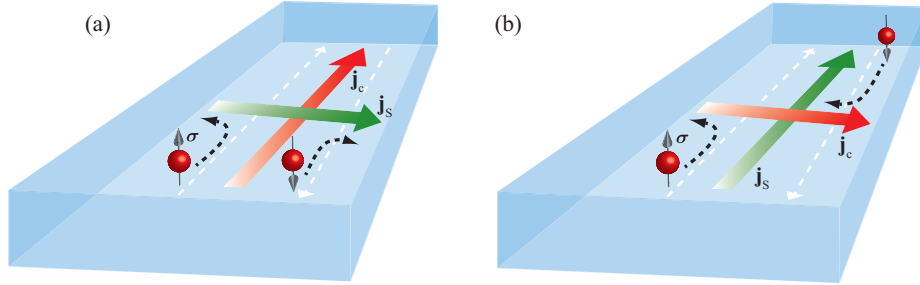


図 1.6 (a) スピンホール効果の模式図。 (b) 逆スピンホール効果の模式図。

#### 1.4.2 スピンホール効果とスピン軌道相互作用

スピンホール効果及び逆スピンホール効果は、スピン軌道相互作用が支配していると前に述べたが、ここでは、スピン軌道相互作用の詳細について述べる。スピン軌道相互作用のハミルトニアン  $H_{SO}$  は、

$$H_{SO} = \lambda_{SO} (\nabla V(\mathbf{r}) \times \mathbf{p}) \cdot \boldsymbol{\sigma} = \lambda_{SO} (\boldsymbol{\sigma} \times \nabla V(\mathbf{r})) \cdot \mathbf{p} \quad (1.4.3)$$

と導出される。ここで、 $\lambda_{SO}$  及び  $\mathbf{p}$  はそれぞれスピン軌道相互作用係数及び電子の運動量を指す。ポテンシャル  $V(\mathbf{r})$  は、結晶のバンド構造や周期的ポテンシャルに起因する内因性機構と、不純物ポテンシャルに起因する外因性機構に分けられる。つまり、物質中を運動する電子はそのスピン方向に応じた力を受けることを示している。

スピン軌道相互作用は電子と電磁場の相互作用を考えたときのディラック方程式によって導出されるパラメータである。例えば速度  $\mathbf{v}$  で運動している電子に電場  $\mathbf{E}$  を印加すると、観測者の座標系 (静止系) において電場と直交する磁場  $\mathbf{B}$  を感じている。この磁場は  $\mathbf{B} = -\frac{1}{\sqrt{1-(v/c)^2}} \left( \frac{\mathbf{v}}{c^2} \times \mathbf{E} \right)$  とローレンツ変換を用いて表現できる。ここで  $c$  は光速を指す。この場合、原子核が作る電場  $\nabla V(\mathbf{r})$  中を運動する電子は磁場  $\mathbf{B}$  を静止系で感じ、この磁場とスピン  $\boldsymbol{\sigma}$  との相互作用によるゼーマンエネルギーとしてスピン軌道相互作用を理解することができる。

### 1.4.3 相対論における逆スピホール効果

スピン流は磁気モーメントの流れ、すなわち磁極  $q_m$  及び  $-q_m$  の流れである。2つの磁極は磁石のN極、S極と考えてもよい。 $q_m$  と  $-q_m$  は逆符号なので、順方向に流れる  $q_m$  と逆方向に流れる  $-q_m$  は等価である。よってスピン流は磁極  $q_m$ 、 $-q_m$  をもった磁気双極子の流れであると考えられる。また、互いに逆向きに流れる同符号の2つの磁極  $q_m$  の磁気モノポール流であるとも仮定できる。電流が磁場を作るように、もし磁気モノポール流  $\mathbf{j}_m$  が存在するならば、相対論に基づいて、それは  $\mathbf{j}_m = \nabla \times \mathbf{E}$  を満たす電場  $\mathbf{E}$  を誘起するはずである [25]。スピン流は反対向きに流れる2つの磁気モノポール流と見なせるので、スピン流が磁気双極子方向と流れる方向それぞれの垂直方向に  $\mathbf{E}$  を発生させることが理解できる (図 1.7 (a))。これは逆スピホール効果と同じ対称性を持つ。

このことについてもう少し詳しく述べる。電場中を運動している電子は、静止系において電場と直交する磁場を感じているが、正電荷と負電荷を持った電気双極子  $\mathbf{P}$  が物質中を速度  $\mathbf{v}$  で運動している場合は、どのようなことが起こるだろうか。この場合、正電荷と負電荷とで逆向きの電流が流れ、 $\mathbf{v} \times \mathbf{P}$  の方向に磁気双極子  $\mathbf{M}$  が発生する。これはアンペールの法則を用いた観点からも同様のことが考えられる。逆に、正と負の磁極を持った速度  $\mathbf{v}$  で運動する磁気双極子  $\mathbf{M}$  は、 $\mathbf{v} \times \mathbf{M}$  の方向に電気双極子  $\mathbf{P}$  を発生させ、これはローレンツ変換を用いて

$$\mathbf{P} = -\frac{1}{\sqrt{1 - (\frac{v}{c})^2}} (\epsilon_0 \mathbf{v} \times \mathbf{M}) \quad (1.4.4)$$

と表現される (図 1.7 (b))。ここで、 $\epsilon_0$  は誘電率である。

スピン流は磁気モーメントすなわち磁気双極子  $\mathbf{M}$  の流れである [26]。(1.4.4) 式から、物質中を  $\mathbf{M}$  が運動すると、 $\mathbf{P}$  が生成されるはずである。スピン流が物質中を流れると電場が発生する逆スピホール効果は発見されているが、磁気双極子  $\rightarrow$  電気双極子変換という直接的なスピン-電気変換現象はまだ発見されていない。本研究では、絶縁体中におけるスピン-電気変換現象の観測を試み、それが実現可能であることを報告する (第4章参照)。

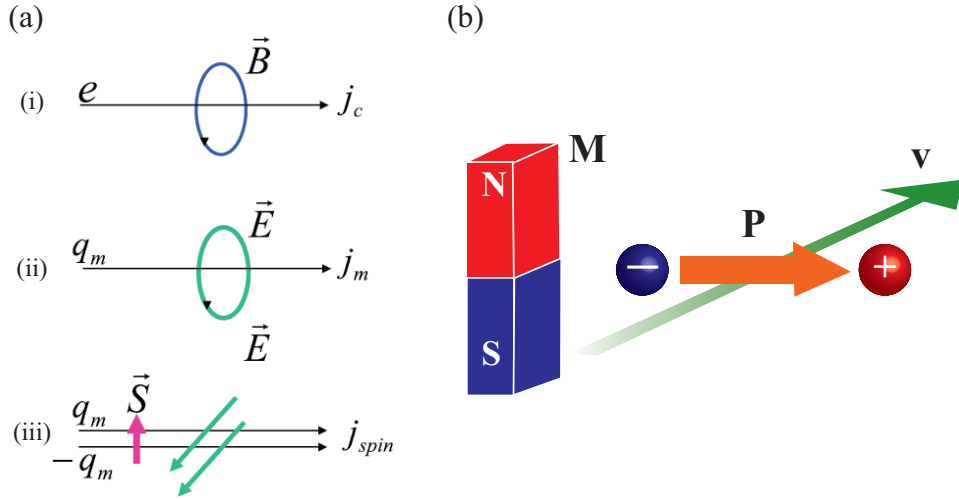


図 1.7 (a) スピン版のアンペールの法則を表す模式図。(i) 電流  $j_c$  のまわりに磁場  $B$  が発生する。(ii) 磁気モノポール流  $j_m$  のまわりに電場  $E$  が発生する。(iii) スピン流  $j_{spin}$  は 2 つの磁気モノポール流の組み合わせで説明でき、流れと垂直方向に  $E$  を誘起する。図は [13] から引用した。(b) 正と負の磁極を持った速度  $\mathbf{v}$  で運動する磁気双極子  $\mathbf{M}$  の模式図。 $\mathbf{v} \times \mathbf{M}$  の方向に電気双極子  $\mathbf{P}$  が誘起される。

## 1.5 スピン間における交換相互作用

物質の磁性は原子の磁気モーメント間の相互作用によって発現する。その本質は Heisenberg によって指摘されたクーロン力とパウリの排他律を組み合わせることによって誘起される交換相互作用である。これによって隣り合うスピンの磁氣的秩序を説明することができた。しかし、本研究で用いた YIG 等の酸化物のように磁性イオンの間に陰イオンが存在する場合も存在し、この場合 Heisenberg 型の交換相互作用は適用し難い。この場合の磁氣的秩序を説明したモデルが Kramers によって提唱され [27]、Anderson によって体系的に研究された超交換相互作用である。さらに、第 4 章において重要な役割を担うジャロシンスキー・守谷相互作用についてもここで述べる。

### 1.5.1 超交換相互作用

Anderson は磁性イオン間に陰イオンが介在する場合に、磁性イオンと周りの陰イオンの軌道を取り入れた混成軌道を考えることによって、陰イオンの効果を考慮するという理

論を展開した [28, 29]。ここでは縮退のない各サイトに電子スピンの一つずつある系における Hubbard モデルを用いて超交換相互作用を簡単に説明する [30]。クーロン相互作用と交換相互作用を取り入れた第2量子化によるモデルハミルトニアンは以下のように表せる。

$$H = -t_{ij} \sum_{\langle i \neq j \rangle} (c_{i\uparrow}^\dagger c_{j\uparrow} + c_{i\downarrow}^\dagger c_{j\downarrow}) + U \sum_i (c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\uparrow} c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\downarrow}) \quad (1.5.1)$$

ここで、 $c_{i\sigma}^\dagger$ 、 $c_{i\sigma}$  ( $\sigma$  はスピン) はサイト  $i$  に作用する生成消滅演算子、 $t_{ij}$  は陰イオンを介したサイト  $i, j$  間の飛び移り積分 (全ての隣接サイト間で同じとする)、 $U$  はクーロンエネルギーである。クーロンエネルギーを基底状態として、サイト間を飛び移るための運動エネルギーを摂動として導入する ( $U \gg t_{ij}$ )。このとき電子が  $i$  サイトから  $j$  サイトへと電子が飛び移り、 $i$  サイトへと再び戻る2次摂動の過程を考えればよい。しかし平行スピンの場合はパウリの排他律により電子移動は禁止されている。よって2次摂動エネルギーのハミルトニアン  $H^{(2)}$  は、

$$H^{(2)} = - \sum_{\langle i, j \rangle} \sum_{\sigma, \sigma'} \frac{t^2}{U} c_{i\sigma'}^\dagger c_{j\sigma'} c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \quad (1.5.2)$$

となる。これらをスピン演算子とフェルミオンの間の関係  $\left[ \mathbf{s}_i^z = \frac{1}{2} (c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\uparrow} - c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\downarrow}), \mathbf{s}_i^+ = c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\downarrow}, \mathbf{s}_i^- = c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\uparrow} \right]$  を使うと (1.5.2) 式は

$$H^{(2)} = - \sum_{\langle i, j \rangle} \frac{t^2}{U} \left( \frac{1}{2} - 2\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j \right) \quad (1.5.3)$$

とスピンの内積を含んだ形となる。(1.5.3) 式から、 $\mathbf{s}_i$  と  $\mathbf{s}_j$  が平行のとき  $H^{(2)}$  は0となり、2つのスピンの反平行の状態エネルギーを下げる。このモデルに軌道の縮退を入れると、たとえば2重縮退のモデルを考えると、各サイトにスピンの一つずつスピンの平行なまま入る状態が安定となる。これは中間状態で軌道縮退により平行・反平行両方の状態を取ることができるが、フント則により1つのサイトに2つのスピンの平行なまま入った方が安定だからである。

### 1.5.2 ジャロシンスキー・守谷相互作用

超交換相互作用の場合、(1.5.3) 式からもわかるように、等方的な相互作用で、スピンの方向にはあらわには依存していない。しかし、スピン軌道相互作用を考慮すると相互作用は異方的になりうる。そして、超交換相互作用を考えていた場合ではサイト間の移動を行うときにスピンの向きが反転する相互作用は考えていない。しかしスピン軌道相互作用によって異なるスピン状態が混ざりうる。(1.4.3) 式から、 $V(\mathbf{r})$  が球対称ポテンシャルは軌道角運動量  $\mathbf{l}$  を使って、

$$H_{\text{SO}} = \lambda_{\text{SO}} \mathbf{l} \cdot \mathbf{s} = \frac{1}{2} (l^+ s^- + l^- s^+) + l_z s_z \quad (1.5.4)$$

と表すことができる。(1.5.4) 式から、たとえば  $l^+ s^-$  の項によって  $\uparrow$  スピンの基底状態には  $\downarrow$  スピンの励起状態が混ざり、 $l^- s^+$  の項によって  $\downarrow$  スピンの基底状態には  $\uparrow$  スピンの励起状態が混ざることがわかる。このことからスピン軌道相互作用が入る場合のモデルハミルトニアンは、(1.5.1) 式に  $c_{i\uparrow}^\dagger c_{j\downarrow} + c_{i\downarrow}^\dagger c_{j\uparrow}$  の形が入りうるということがわかる。この場合以下のようなハミルトニアンを仮定する。

$$H = \sum_{\langle i \neq j \rangle} \left[ b_{ij} (c_{i\uparrow}^\dagger c_{j\uparrow} + c_{i\downarrow}^\dagger c_{j\downarrow}) + C_{ij}^z (c_{i\uparrow}^\dagger c_{j\uparrow} + c_{i\downarrow}^\dagger c_{j\downarrow}) + C_{ij}^- c_{i\uparrow}^\dagger c_{j\downarrow} + C_{ij}^+ c_{i\downarrow}^\dagger c_{j\uparrow} \right] + U \sum_i (c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\uparrow} c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\downarrow}) \quad (1.5.5)$$

ここで  $b_{ij}$  は電子の運動エネルギーと電子が受けるポテンシャルを考慮した際の飛び移り積分、 $C_{ij}$  はスピン軌道相互作用を考慮した際の飛び移り積分である ( $C^\pm = C^x \pm iC^y$ )。 (1.5.5) 式を用いて 2 次摂動エネルギーを求めようとする、超交換相互作用を表す  $\frac{b_{ij}^2}{U}$  に比例する項以外にも、 $\frac{b_{ij}C_{ij}}{U}$ 、 $\frac{C_{ij}^2}{U}$  に比例する項も含まれる。ここでは  $\frac{b_{ij}C_{ij}}{U}$  に比例する項を考える。たとえば、 $bC^z$  の項について計算してみると、2 次摂動エネルギー  $H^{(2)}(bC^z)$  は

$$H^{(2)}(bC^z) = - \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\sigma, \sigma'} \left( \frac{b_{ij}C_{ji}^z + b_{ji}C_{ij}^z}{U} \right) c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma'} c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \quad (1.5.6)$$

と表すことができる。(1.5.6) 式をスピン演算子とフェルミオンの間の関係を用いて展開すると、 $H^{(2)}(bC^z)$  は

$$H^{(2)}(bC^z) = \sum_{\langle i,j \rangle} D_{ij}^z [\mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j]_z \quad (1.5.7)$$

となる。同様に  $bC^+$ 、 $bC^-$  の項も計算可能であり、結局 2 次摂動エネルギー  $H^{(2)}(bC)$  は

$$H^{(2)}(bC) = \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij} \cdot [\mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j] \quad (1.5.8)$$

と求められる。ここで  $\mathbf{D}_{ij}$  は

$$\mathbf{D}_{ij} = \frac{2i}{U} [b_{ij}\mathbf{C}_{ji} - b_{ji}\mathbf{C}_{ij}] \quad (1.5.9)$$

で与えられる。(1.5.7) 式はスピンのベクトル積に比例した反対称交換相互作用を与えていて、ジャロシンスキー・守谷相互作用 [Dzyaloshinsky-Moriya interaction] とよぶ [31, 32]。(1.5.9) 式の  $\mathbf{D}_{ij}$  の形から、 $i$  サイトと  $j$  サイトの真ん中に反転中心があれば  $\mathbf{D}_{ij} = 0$  になることがわかる (すなわち  $b_{ij}\mathbf{C}_{ji} = b_{ji}\mathbf{C}_{ij}$ )。つまりこの相互作用は反転中心をもつスピン間には働かない。ジャロシンスキー・守谷相互作用は超交換相互作用と違い、スピン依存の飛び移り積分が入ることがわかる。 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  などで観測されている弱い強磁性はこの相互作用によって説明されている。

## 1.6 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ の基礎物性

ここでは第4章で用いるイットリウム鉄ガーネット ( $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ : YIG) の構造・物性について述べる [33]。YIG は希土類鉄ガーネット ( $\text{R}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ : RIG) の一つで、代表的なガーネット型フェライトである。YIG は強磁性共鳴によるスペクトルの半値幅が非常に狭いことと (0.05 mT 程度)、薄い試料 (厚さ約数十  $\mu\text{m}$ ) が透明になることから注目を集めることとなった。これは、磁気緩和が非常に小さく、緩和時間が長いことを意味する。そして、スピン波や磁気光学関連の研究で盛んに研究が行われてきた。2.6 eV もの非常に大きなバンドギャップを有するモット絶縁体であり、電気抵抗率も  $10^{13}\Omega\cdot\text{cm}$  オーダーと非常に大きいことがわかっている [34]。他にも結晶磁気異方性や磁歪定数は非常に小さいことが知られている。

図 1.8(a) 及び 1.8(b) に YIG の結晶構造を示した [35]。結晶構造は立方晶であり、単位胞中に 160 原子を含む複雑な構造をとっている。その中のサイトに着目すると、16 (a) サイト及び 24 (d) サイトに  $\text{Fe}^{3+}$  イオンが、24 (c) サイトに  $\text{Y}^{3+}$  イオンが、96 (h) サイトに  $\text{O}^{2-}$  イオンが配置されている。YIG における磁気イオンは  $\text{Fe}^{3+}$  のみであり、16 (a) サイトと 24 (d) サイトの  $\text{Fe}^{3+}$  が反強磁性的に結合しており、フェリ磁性である。これは



超交換相互作用に起因するものである。

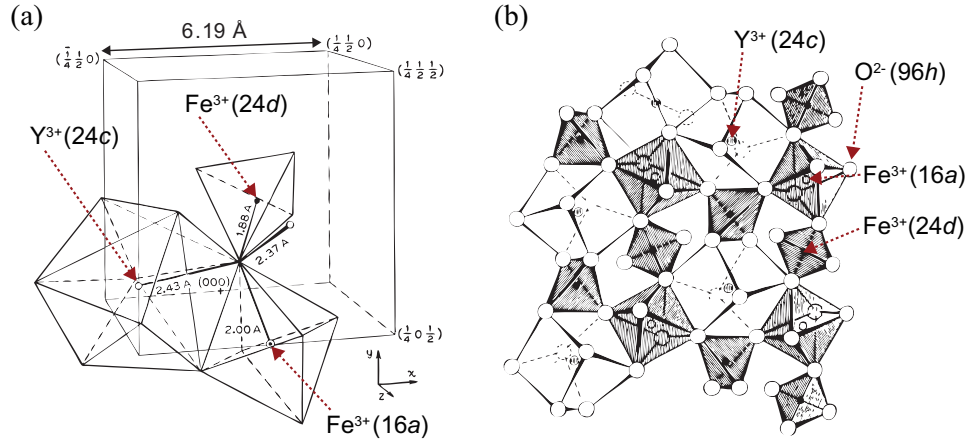


図 1.8 (a) イットリウム鉄ガーネット ( $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ : YIG) の結晶構造。(b) YIG のそれぞれの配位子の空間構造。

## 第 2 章

# 実験方法

本研究では、スピン流-電気変換現象に関する物理を強磁性金属及び絶縁体について体系的に理解するために、強磁性金属/常磁性金属複合膜及び磁性絶縁体に着目した。本章では、スピン流-電気変換現象に関する物理を網羅的に把握するために用いた試料の作製方法や評価法について説明する。

### 2.1 試料の作製法

#### 2.1.1 常磁性・強磁性金属薄膜の成膜法

第 3 章で述べるスピンプンピング法を用いた逆スピンホール電圧測定で使用した強磁性金属/常磁性金属複合膜及び第 4 章で述べる  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  平板の上に製膜する電極膜の作製法について述べる。本研究では電子ビーム蒸着法を用いて、組成を変化させた NiFe 合金  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  ( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ ) 及び遷移強磁性金属である Co を成膜し、マグネトロンスパッタリング法を用いて、常磁性金属である Au, Pt, Ti 及び非磁性絶縁体である  $\text{SiO}_2$  を成膜した。第 3 章における測定に使用した強磁性金属/常磁性金属複合膜は、熱酸化された Si 基板上に製膜した。これらの試料は、成膜を行う前に超音波洗浄器によりアセトンで 10 分間、メタノールで 10 分間、順に洗浄した。そして、エアガンにより洗浄液を吹き飛ばして乾燥させた。次に、 $\text{SiO}_2$  基板上に一枚目のメタルマスク (図 2.1 (a)) を被せ、そこから常磁性金属である Pt をスパッタリング法で製膜した。このとき Ar 雰囲気中で (流量は 3 sccm) 製膜中の真空度を  $7 \times 10^{-3}$  Torr に保ちながら製膜を行った。がここで、メタルマスクが動かないよう  $\text{SiO}_2$  基板とメタルマスクを

導電性の Ag ペーストで固定した。その後二枚目のメタルマスク (図 2.1 (b)) を一枚目の上に重ねて被せ、強磁性金属である NiFe 合金及び Co を高真空電子ビーム蒸着法で製膜した。このとき真空度を  $5 \times 10^{-7}$  Torr 以下に保ちながら製膜を行った。蒸着が終わった後にメタルマスクを試料から取り外し、余分な  $\text{SiO}_2$  基板をタングステンカーバイトペンで削り落とし、試料を 12 個に切り分けた。ここで一層目の両端が大きくなっているのは、配線を付ける際の電極として用いるためである。

第4章で測定に使用した  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  平板の上に製膜する Au、Ti、 $\text{SiO}_2$  薄膜もスパッタリング法を用いて製膜した。これらの薄膜は製膜を行う前に、ターゲット上の混入物を取り除くためにプレスパッタリングを 30 分ほど行った。

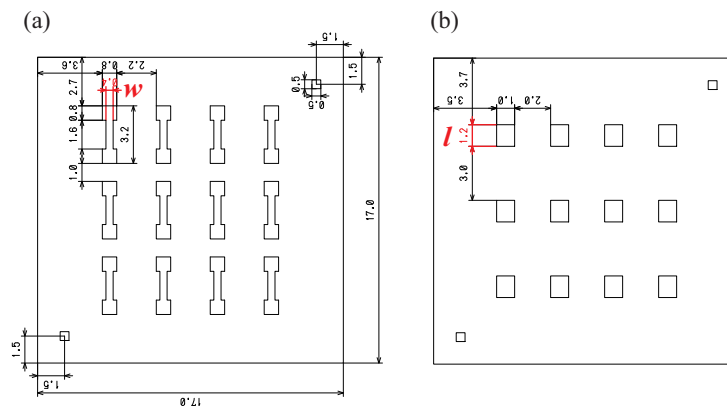


図 2.1 メタルマスクの模式図。図中の赤字が複合膜の形状の長さ  $w$ 、 $l$  を決定する。  
(a) 常磁性金属層を成膜する際に使用するメタルマスクの形状。(b) 強磁性金属層を成膜する際に使用するメタルマスクの形状。単位は mm である。

## 2.2 実験系の測定法

### 2.2.1 マイクロ波分光法を用いた磁化ダイナミクスの測定

本研究では、磁化ダイナミクスの解析に電子スピン共鳴 (Electron Spin Resonance: ESR) 装置 (JES-FA200: JEOL 製) 及びベクトルネットワークアナライザーを用いた。両者ともに強磁性共鳴を測定するための装置であり、外部直流磁場を印加しながら、マイクロ波を照射して試料のマイクロ波吸収を測定するものである [36]。ESR 装置は印加するマイクロ波の周波数が固定されているのに対し、ベクトルネットワークアナライザーは

印加する周波数を自由に変調することができる。しかし、ESR 装置は  $Q$  値を 10000 くらいまで感度を上げることが可能であり、マイクロ波吸収の感度の点では、ESR の方がネットワークアナライザより上である。この ESR 装置は測定試料に固定角周波数  $\omega$  (本研究では X バンド領域の 9.4 GHz) のマイクロ波を照射し、外部直流磁場  $H$  を掃引しながらのマイクロ波吸収強度を測定できる。まず、ESR 装置の説明を行う。ESR 測定装置の基本的な構成は試料測定部 (マイクロ波共振器) を含むマイクロ波回路系、検波信号の増幅回路系、記録計またはデータ収録・記憶系、電磁石・磁場変調回路系等である。マイクロ波の交流電力を  $P_0$  とし、これが空洞共振器内の試料によって吸収されるとする。このときインダクタンス  $L$  の共振回路中に帯磁率  $\chi = \chi' + i\chi''$  を持つ試料が挿入されると、共振回路のインピーダンス  $Z$  は  $Z_0 = R + i(\omega L - 1/C\omega)$  から

$$\begin{aligned} Z_L &= R + i \left[ \omega L(1 + \chi) - \frac{1}{C\omega} \right] \\ &= R + \omega L\chi'' + i\omega L(1 + \chi') - \frac{i}{C\omega} \end{aligned} \quad (2.2.1)$$

に変化するので、抵抗部分は  $\omega L\chi''$  だけ増加する。よってこの抵抗部分の増加分だけジュール熱として余分にマイクロ波交流電力が消費されることになる。よって ESR が誘起された時に共振器内で吸収されるマイクロ波は  $\omega L\chi''$  である。一般的に共振回路の共振の鋭さを示す値として  $Q$  値 ( $Q$ -factor) が用いられ、共振周波数  $f$  と共振の幅  $\Delta f$  の比  $Q = f/\Delta f$  として定義される。 $Q$  値は一周期中に共振器の中に蓄えられた電磁波のエネルギーと失われたエネルギーの比としても表わされる。共振の鋭さを表す  $Q$  値が高いほど、高感度測定が可能である。

強磁性共鳴による試料のマイクロ波の吸収量  $P$  について考察する。このとき試料にマイクロ波による交流磁場と  $z$  軸方向に直流磁場を合わせた磁場  $\mathbf{H} = (h \cos \omega t, h \sin \omega t, H)$  を印加した時の状況を考える。このときの電子スピンの磁気モーメントの集合全体を磁化  $\mathbf{M}$  とする。 $\mathbf{M}$  の交流磁場に対する時間応答は、静磁場に対する応答とは異なり、磁化は追従できずに遅れる。この遅れは位相のずれとして現れ、複素帯磁率で記述できる。ここで複素帯磁率  $\chi = \chi' - i\chi''$  を導入すれば、同位相応答の磁化、 $\pi/2$  位相遅れの磁化をそれぞれ  $M'$ 、 $M''$  と定義すると、

$$\begin{aligned} M' &= \chi' h \sin \omega t \\ M'' &= -\chi'' h \cos \omega t = \chi'' h \sin(\omega t - \pi/2) \end{aligned} \quad (2.2.2)$$

となる。試料によるマイクロ波電力の吸収は、単位時間当たりの磁気エネルギーの変化分に対応するので、 $H(dM/dt) = Hd(M' + M'')/dt$  となる。交流磁場一周あたりでのマイクロ波吸収の時間は  $2\pi/\omega$  なので、全吸収量  $P$  は時間 0 から  $2\pi/\omega$  までの変化分を (2.2.3) 式のように積分して定量できる。

$$\begin{aligned} P &= \frac{\omega}{2\pi} \int H \frac{dM}{dt} dt \\ &= \frac{\omega}{2\pi} h^2 \int \omega (\sin \omega t \cdot \chi' \cos \omega t + \sin \omega t \cdot \chi'' \sin \omega t) dt \end{aligned} \quad (2.2.3)$$

(2.2.3) 式の第一項は 0 となり、第二項は  $(1/2)\omega\chi''h^2$  を与えるので、

$$P = \frac{1}{2}\omega\chi''h^2 \quad (2.2.4)$$

が得られ、 $\chi'$  は  $P$  には現れない。

ESR 測定装置では磁場変調によるロックイン法を用いているために、ESR 信号の吸収曲線は一次微分型となっている (図 2.2 (b))。この微分吸収曲線の最大値  $I'_m$ 、最小値  $-I'_m$  ならびにそれらの磁場を与える幅  $W$  がパラメータとなる。線幅  $W$  は吸収線の最大ピークと最小ピークの幅として定義される。以後、 $W$  をピーク間線幅と呼ぶことにする。また吸収線の半値幅  $\Delta H_{1/2}$  と  $W$  の間に  $\Delta H_{1/2} = \sqrt{3}\Delta H_{pp}$  の関係があればローレンツ線形と判定できる。さらに吸収線の  $\Delta H_{1/2}$  と  $W$  の間に  $\Delta H_{1/2} = \sqrt{2\ln 2}W$  の関係があればガウス線形と判定できる。測定された吸収曲線がローレンツ線形だと仮定すると、線幅  $\Delta H_{pp}$  は  $\Delta H_{1/2} = \sqrt{3}W$  の条件を利用すると、

$$W = \frac{2\alpha\omega_0}{\sqrt{3}\gamma} = \frac{2}{\sqrt{3}\tau\gamma} \quad (2.2.5)$$

となる。すなわち (2.2.5) 式より、強磁性共鳴の吸収曲線を調べることでピーク線幅から磁化の歳差運動の緩和を評価できる。

## 2.2.2 強磁性共鳴における磁化ダイナミクス

ここでは強磁性共鳴によって、磁化が緩和される過程を考え、マイクロ波分光によって得られる吸収曲線について説明する [37]。LLG 方程式 (1.3.1) について、磁化  $\mathbf{M} = (M_x, M_y, M_z)$  が  $z$  軸方向に印加されている磁場  $\mathbf{H} = (0, 0, H_z)$  の周りで歳差運動

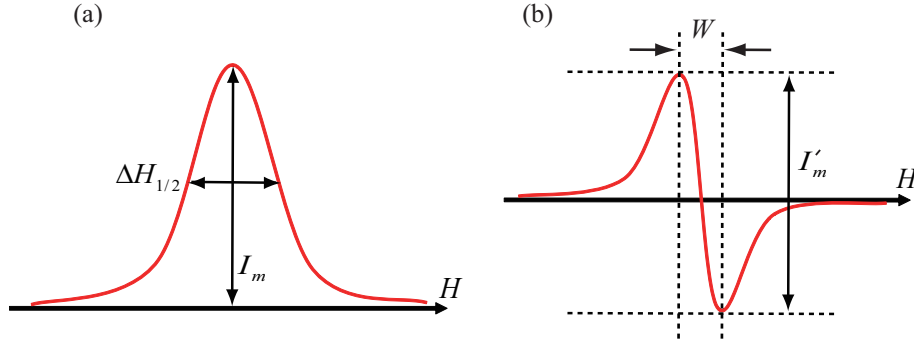


図 2.2 (a) 強磁性共鳴の吸収曲線。 $\Delta H_{1/2}$  は半値幅、 $I_m$  は吸収強度である。(b) ESR 装置によって実際に測定させる強磁性共鳴の微分吸収曲線。 $W$  は線幅、 $I'_m$  は吸収線の最大値である。ローレンツ型曲線の場合には  $\Delta H_{1/2} = \sqrt{3}W$  の関係がある。

して、次第に緩和項によって緩和する状況を考える。ここで磁化の  $z$  軸方向は時間的に変化しないとすると、磁化  $\mathbf{M}$  の各成分の時間微分は、

$$\begin{aligned}\dot{M}_x &= -\gamma M_y H_z + \frac{\alpha}{M_s} (M_y \dot{M}_z - M_z \dot{M}_y) \\ \dot{M}_y &= \gamma M_x H_z + \frac{\alpha}{M_s} (M_z \dot{M}_x - M_x \dot{M}_z) \\ \dot{M}_z &= 0 + \frac{\alpha}{M_s} (M_x \dot{M}_y - M_y \dot{M}_x)\end{aligned}\quad (2.2.6)$$

となる。これらの解として

$$\begin{aligned}M_x &= m_x = m_0 e^{-t/\tau} \cos \omega_0 t \\ M_y &= m_y = m_0 e^{-t/\tau} \sin \omega_0 t\end{aligned}\quad (2.2.7)$$

とおく。 $e^{-t/\tau}$  を入れたのは磁化の時間変化成分は時間とともに変化して  $m_0 e^{-t/\tau}$  で小さくなるようにするためである。 $M_s = M_x^2 + M_y^2 + M_z^2$  なので (2.2.7) 式より  $M_z$  は

$$M_z = M_s \left[ 1 - \left( \frac{m_0}{M_s} \right)^2 e^{-2t/\tau} \right]^{1/2} \quad (2.2.8)$$

で、時間とともに  $M_z$  は大きくなり、最終的には  $M_s = M_z$  となって、 $\mathbf{M}$  は完全に  $\mathbf{H}$  方向を向く。 $\mathbf{M}$  が減衰して向きを変える速度は  $\tau$  に依存する。 $\tau$  は緩和時間と呼ばれる。(2.2.7) 式とその微分とを (2.2.6) 式の  $\dot{M}_z$  の部分に代入すると、

$$\dot{M}_z = \frac{\alpha}{M_s} m_0^2 \omega_0 e^{-2t/\tau} \quad (2.2.9)$$

となる。一方、(2.2.8) 式を微分すると、

$$\dot{M}_z = \frac{\frac{1}{\tau} m_0^2 \omega_0 e^{-2t/\tau}}{M_s \left[ 1 - \left( \frac{m_0}{M_s} \right)^2 e^{-2t/\tau} \right]^{1/2}} \quad (2.2.10)$$

であるから、両方が等しいとすれば、

$$\alpha \tau \omega_0 = \frac{1}{\left[ 1 - \left( \frac{m_0}{M_s} \right)^2 e^{-2t/\tau} \right]^{1/2}} \quad (2.2.11)$$

の関係が得られる。 $(m_0/M_s)^2 \ll 1$  と近似すれば、

$$\tau \approx 1/\alpha \omega_0 \quad (2.2.12)$$

となる。このように  $\tau$  は  $\alpha$  が大きい程小さいという関係を導いた。すなわち  $\alpha$  が大きいと  $\mathbf{M}$  はすぐに減衰して  $\mathbf{H}$  方向を向くはずである。次に磁化  $\mathbf{M}$  を持った強磁性体に直流磁場  $\mathbf{H}$  ( $z$  軸方向) を印加し、かつそれに直角に交流磁場  $\mathbf{h}$  を印加した場合を考える。この  $\mathbf{h}$  の周波数が歳差運動の  $\omega_0$  に等しいならば、 $\mathbf{M}$  は  $\mathbf{h}$  からエネルギーを得て、減衰せずに歳差運動を続ける。これが強磁性共鳴 (FMR) である。

ここで周波数  $\omega$  の交流磁場  $\mathbf{h}$  を印加した場合を考え、 $\mathbf{M}$  の  $xy$  面内成分を  $\mathbf{m} = m_0 e^{i\omega t}$  とする。そして、 $M_z \approx M_s$  と近似すると、これから  $\mathbf{M} = (m_x, m_y, M_s)$  を導き出せる。また、磁場については  $h_x, h_y$  は  $\mathbf{h} = h_0 e^{i\omega t}$  の  $x, y$  成分であるので、 $\mathbf{H} = (h_x, h_y, H)$  を同様に求められる。 $\mathbf{m}, \mathbf{h}$  は  $\mathbf{M}, \mathbf{H}$  に比べて小さいとして、これらの2次以上の項は省略すると  $m_x$  は

$$\begin{aligned} \dot{m}_x &= -\gamma m_y H + \gamma M_s h_y - \frac{\alpha}{M_s} M_s \dot{m}_y \\ i\omega m_x &= -\omega_0 m_y + \gamma M_s h_y - i\alpha \omega m_y \end{aligned}$$

となり、 $m_y$  についても同様に計算できる。これらを整理すると、

$$-i\omega m_x = (\omega_0 + i\alpha\omega) m_y - \gamma M_s h_y \quad (2.2.13)$$

$$-i\omega m_y = \gamma M_s h_x - (\omega_0 + i\alpha\omega) m_x \quad (2.2.14)$$

となる。(2.2.14) 式を変形して、(2.2.13) 式に代入すると  $m_x$  を、(2.2.13) 式を変形して、

(2.2.14) 式に代入すると  $m_y$  が求められるので、これらから  $m_x$ 、 $m_y$  を導くと

$$\begin{aligned} m_x &= \frac{(\omega_0 + i\alpha\omega)\gamma M_s}{(\omega_0 + i\alpha\omega)^2 - \omega^2} h_x + i \frac{\omega\gamma M_s}{(\omega_0 + i\alpha\omega)^2 - \omega^2} h_y \\ m_y &= i \frac{\omega\gamma M_s}{(\omega_0 + i\alpha\omega)^2 - \omega^2} h_x + \frac{(\omega_0 + i\alpha\omega)\gamma M_s}{(\omega_0 + i\alpha\omega)^2 - \omega^2} h_y \end{aligned} \quad (2.2.15)$$

となる。ここで

$$\begin{aligned} \chi &= \frac{(\omega_0 + i\alpha\omega)\gamma M_s}{(\omega_0 + i\alpha\omega)^2 - \omega^2} \\ \kappa &= \frac{-\omega\gamma M_s}{(\omega_0 + i\alpha\omega)^2 - \omega^2} \end{aligned} \quad (2.2.16)$$

とおくと (2.2.15) 式は

$$\begin{aligned} m_x &= \chi h_x - i\kappa h_y \\ m_y &= i\kappa h_x + \chi h_y \end{aligned} \quad (2.2.17)$$

となる。(2.2.16) 式で与えた  $\chi$  から  $\chi = \chi' - i\chi''$  とした時の複素磁化率  $\chi'$ 、 $\chi''$  を求めると、

$$\begin{aligned} \chi' &= \frac{\gamma M_s \omega_0 (\omega_0^2 - \omega^2) + \gamma M_s \omega^2 \alpha^2 \omega_0}{[\omega_0^2 - \omega^2 (1 + \alpha^2)]^2 + 4\omega^2 \omega_0^2 \alpha^2} \\ \chi'' &= \frac{\gamma M_s \omega \alpha [\omega_0^2 + \omega^2 (1 + \alpha^2)]}{[\omega_0^2 - \omega^2 (1 + \alpha^2)]^2 + 4\omega^2 \omega_0^2 \alpha^2} \end{aligned} \quad (2.2.18)$$

となる。

全く減衰のない場合すなわち  $\alpha = 0$  では、 $\chi'$  は  $\omega = \omega_0$  で極大となり、さらに  $\omega$  が増すと  $\chi' = -\infty$  となる。そして  $\omega \rightarrow \infty$  で  $\chi' \rightarrow 0$  となる。 $\chi''$  は  $\alpha = 0$  では  $\omega = \omega_0$  以外では 0 となり、 $\omega = \omega_0$  では  $\chi'' = \infty$  となる。実際は  $\alpha = 0$  ではないので共鳴時のピークの鋭さは減る。多くの場合では  $1 \gg \alpha^2$  と考えられるので、 $\chi''$  は  $\omega = \omega_0$  の時に極大となり、大きさは

$$\chi''(\omega = \omega_0) = \frac{\gamma M_s}{2\omega_0 \alpha} \quad (2.2.19)$$

である。ここで  $\chi'$ 、 $\chi''$  の周波数特性を図 2.3 (a) 及び図 2.3 (b) に示す。 $\chi''$  の周波数特性を表わすには、半値幅  $\Delta\omega$  を用いる。これは  $\chi''(\omega = \omega_0)$  の 1/2 の高さになる周波数の幅である。この時半値幅は  $\Delta\omega = 2\alpha\omega_0$  となり、測定では磁場を変化させる方が容易なの



で、 $\Delta\omega$  に対応する  $\Delta H_{1/2}$  を用いる。その関係は  $\gamma\Delta H_{1/2} = \Delta\omega$  にあるので、

$$\Delta H_{1/2} = \frac{2\alpha\omega_0}{\gamma} \quad (2.2.20)$$

となる。ここで (2.2.12) 式を用いると  $\tau$  は

$$\tau = \frac{2}{\gamma\Delta H_{1/2}} \quad (2.2.21)$$

の形になる。

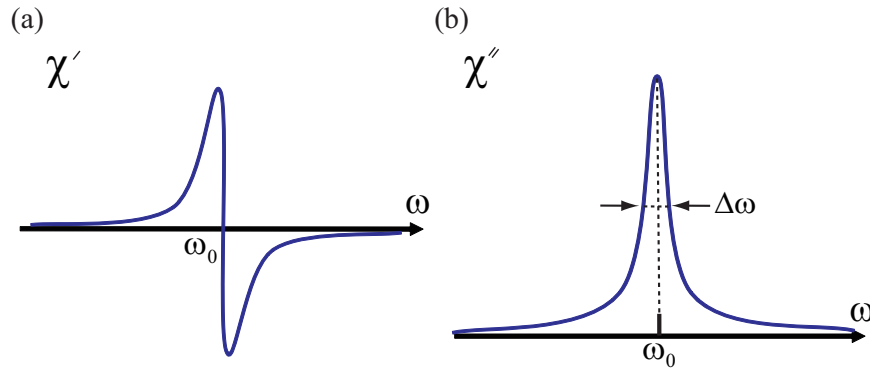


図 2.3 (a)  $\chi'$  の  $\omega$  依存性。 (b)  $\chi''$  の  $\omega$  依存性。

### 2.2.3 逆スピホール効果による電圧の測定

強磁性共鳴によってスピポンピングが誘起され、そのときに生成されたスピンは、強磁性金属に接合した常磁性金属へと流れ込む。そのスピンは逆スピホール効果によって起電力へと変換される。本研究では強磁性共鳴スペクトルと同時にこの起電力を測定した。逆スピホール効果によって生じる起電力  $V_{\text{ISHE}}$  は、(1.4.2) 式からわかるように、スピンの空間方向  $\mathbf{j}_s$  とスピン分極  $\boldsymbol{\sigma}$  に垂直な方向に生じる。このことから強磁性金属/常磁性金属複合膜の電極と外部直流磁場が垂直になるように石英管に試料を両面テープを用いて固定した。その後、常磁性体層の電極部分に Ag ペーストを用いてポリウレタン導線を配線した。このとき、石英管に取り付けた試料の写真を図 2.4 (a) に示した。

本研究で使用する試料を ESR 装置の空洞共振器に設置し、外部直流磁場  $\mathbf{H}$  を図 2.4 (b) に示してあるように試料面と平行な面内に印加した。この時、ESR 装置の変調磁場

による誘導起電力を小さくするために導線を十分にねじった。石英管に装着した試料は ESR 装置の空洞共振器内の中心付近に設置し、配線した導線は空洞共振器の外に取り出した。この導線は起電力の DC 成分を検出する電圧計であるナノボルトメータ (2182A Nanovoltmeter: Keithley 社製) に接続した。強磁性共鳴時に検出される起電力として、スピンプンピングに由来する逆スピンホール効果による起電力の他に、マイクロ波電場により生じた異常ホール効果による起電力が挙げられる。本研究では、逆スピンホール効果による起電力を異常ホール効果などの他の効果と分離するために、 $TE_{011}$  モードのマイクロ波空洞共振器を ESR 装置で用いた (図 2.4 (b))。このときマイクロ波の電場成分が共振器内で最小になるように、試料位置を調整した [43]。

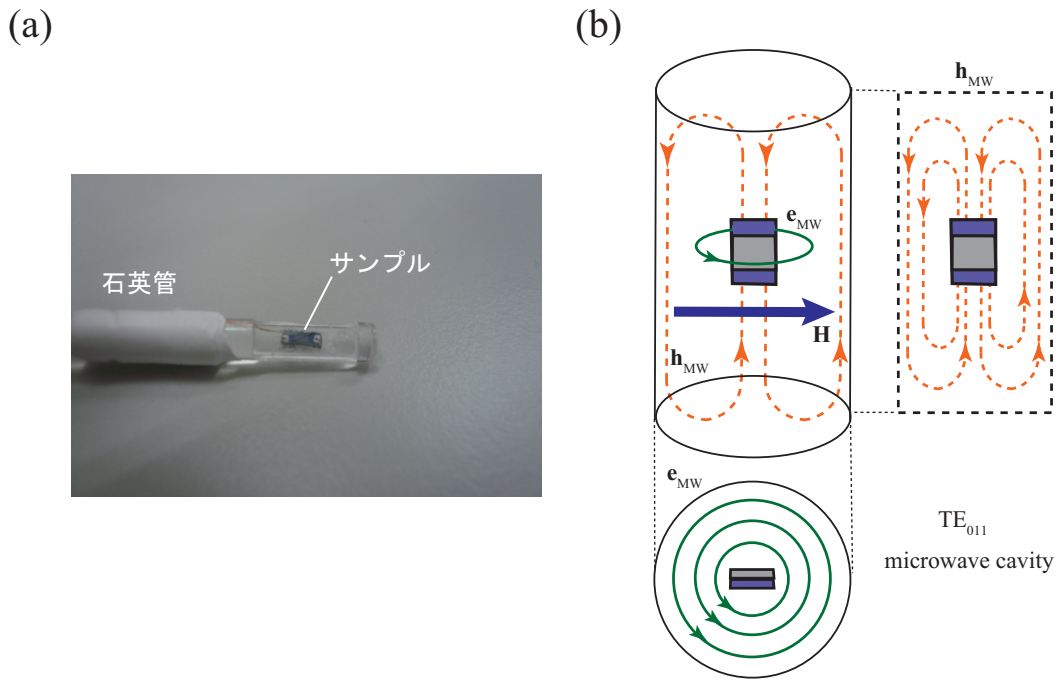


図 2.4 (a) 石英管に固定した試料の写真。(b)  $TE_{011}$  モードのマイクロ波空洞共振器の模式図。 $h_{MW}$  及び  $e_{MW}$  はそれぞれマイクロ波の磁場成分、電場成分を表している。

#### 2.2.4 電気分極発現による分極電流の測定

本節では第 4 章で用いるスピン波スピン流を利用して、スピン-電気変換現象を観測したときの測定手法について述べる。本研究では、電流計であるエレクトロメータ (6514 Electrometer: Keithley 社製) を用いて電気分極による分極電流を測定した。分極電流を

測定するためにスピン波スピン流を励起する必要があるため、同時にマイクロ波導波路を YIG 平板の下に敷き、両面テープで固定した。そして、試料にマイクロ波と外部直流磁場を印加した。マイクロ波を導入するために、ベクトルネットワークアナライザーを用いた。ベクトルネットワークアナライザーはマイクロ波を導入するだけでなく、検出するためにも用いた。このときの測定系の模式図を図 2.5 (a) に示す。同軸ケーブルによってマイクロストリップ導波路と接続したネットワークアナライザーからマイクロ波を導入し、同時に試料端に発生する分極電流を測定した (図 2.5 (b))。全ての測定は室温で行った。本研究で YIG 平板に Au 及び Ti をスパッタすることによって作製したコンデンサーの電極に発生する電気分極  $P = Q/S$  は、分極電流  $I = dQ/dt$  を用いて、

$$P = \frac{1}{S} \int I dt \quad (2.2.22)$$

と表せる。ただし  $Q$  及び  $S$  は電極に溜まる電荷及びコンデンサーの面積である。本研究では、マイクロ波の周波数  $f$  を掃引しながら分極電流を測定した。つまり、測定間隔を  $\Delta t$  とおくと、

$$P = \frac{1}{S} \sum I \Delta t \quad (2.2.23)$$

となるので、測定された電流値  $I$  に測定間隔  $\Delta t$  を掛けて、足し合わせることで電気分極の値を求めた。分極電流を検出するときには、低ノイズタイプの 3 軸ケーブルを使用して、ケーブル内の摩擦抵抗をなるべく最小になるようにしている。

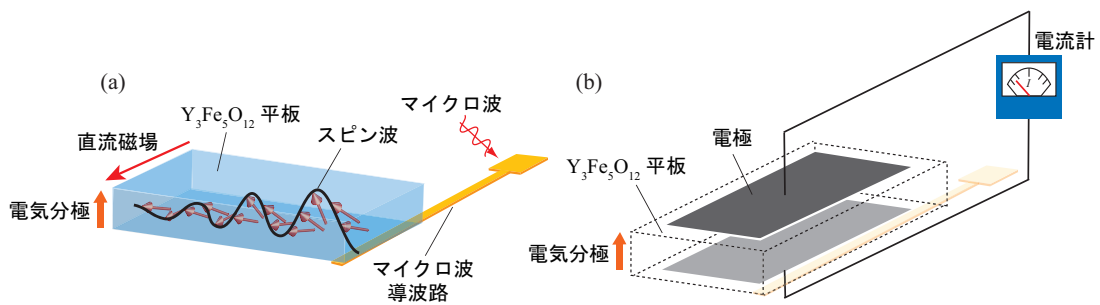


図 2.5  $Y_3Fe_5O_{12}$  平板を用いたスピン-電気変換現象の測定の模式図。(a)  $Y_3Fe_5O_{12}$  平板とマイクロ波導波路の配置の測定系の模式図。(b) 電気分極測定の測定系の模式図。

## 第 3 章

# スピンプンピング誘起逆スピンホール効果による生成スピン流の物質依存性

スピン流の生成及び制御を自在に行うことが、現代のスピン트로ニクスの中核になることは、前に述べた。現在スピン注入型磁気抵抗メモリ (spin-RAM) 等 [38]、スピン트로ニクス関連の技術が実用化に向けて盛んに研究されているが、スピン流は将来的にそれらの技術に大きな寄与を与えるはずである。しかし、スピン트로ニクスにおける重要な要素であるスピン流と磁化ダイナミクスとの相互作用については未解明な点が多くあるのが現状である。特にスピン流の生成及び制御手法については未解明な点が数多くあり、スピン流を効率的に制御することができれば、将来的にスピン流を用いたデバイス開発にも役立つはずである。その中でも、スピンプンピング及び逆スピンホール効果はスピン流の生成及び検出手法として代表的なものとなっている。本章では、スピンプンピングによって生成されるスピン流密度がどのような強磁性体の物質パラメーターによって決定づけられるのかを系統的に調べた。この結果、生成されるスピン流の大きさが強磁性体の磁化歳差運動と密接に関係することが明らかになった。

### 3.1 スピンポンピング誘起逆スピンホール効果によるスピン流生成

スピン流の生成と制御は現代のスピン트로ニクス的重要課題となっている。その中で、スピン流の生成手法の一つとしてスピンポンピングがある [39–42]。スピンポンピングは強磁性体/常磁性体の界面で、磁化歳差運動によってスピン流が生成される現象である。スピンポンピングによるスピン流生成は、強磁性金属 [23, 43–52]、強磁性半導体 [53–56] 及びフェリ磁性絶縁体 [57–66] において実現されている。スピンポンピングによって常磁性体に注入されたスピン流の検出手法としては、これは逆スピンホール効果を用いて実現することができる。常磁性層に注入されたスピン流は、逆スピンホール効果によって電流へと変換される。この電流を検出することによって、スピン流を電気的に検出することが可能となる。これらの現象を組み合わせることにより、スピン流の生成及び検出が可能となる。本研究では、これらの手法を用いて測定を行なった。

スピンポンピングは磁化歳差運動によって駆動されている。スピンポンピングによって常磁性層に注入されるスピン流は (1.3.5) 式によって記述されている。(1.3.5) 式の第1項によると、LLG 方程式 [(1.3.1)] の磁化歳差運動の Gilbert 緩和にあたる部分に比例していることがわかる。スピンポンピング誘起逆スピンホール効果によって生成されるスピン流の定量的な理解を行うためには、磁化歳差運動及び Gilbert 緩和についての理解が重要である。強磁性体の物質パラメーター (磁化、Gilbert 緩和) 等が磁化歳差運動及びスピンポンピングにどのような影響を与えるかを本研究では追求した。本章では、様々な強磁性金属 (NiFe 合金及び Ni、Fe、Co の遷移金属強磁性体) を用いてスピンポンピングによるスピン流が強磁性体のどのような物質パラメーターによって決定づけられるのかを系統的に調べた。

### 3.2 強磁性共鳴を用いたスピン流生成と逆スピンホール効果による起電力測定

本研究では、強磁性共鳴によってスピンポンピングを誘起し、スピンポンピングによって生成されたスピン流が強磁性金属に接合した常磁性金属へと流れ込む。そのスピン流は

逆スピンホール効果によって起電力へと変換されるが、そのときのマイクロ波の吸収スペクトルと起電力の解析を行なった。測定で使用した試料の模式図を図 3.1 (a) に示した。また、図 3.1 (b) にスピンポンピングによるスピン流生成と逆スピンホール効果によるスピン流－電場変換の模式図を示した。試料としては、 $\text{SiO}_2$  基板上に成膜した Pt 薄膜上 10nm に強磁性金属 10nm $[\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x(x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1), \text{Co}]$  を成膜した、強磁性金属/Pt 複合膜を用いた。前章で示したように、測定試料を石英管に取り付けて ESR 装置の空洞共振器内に設置した。

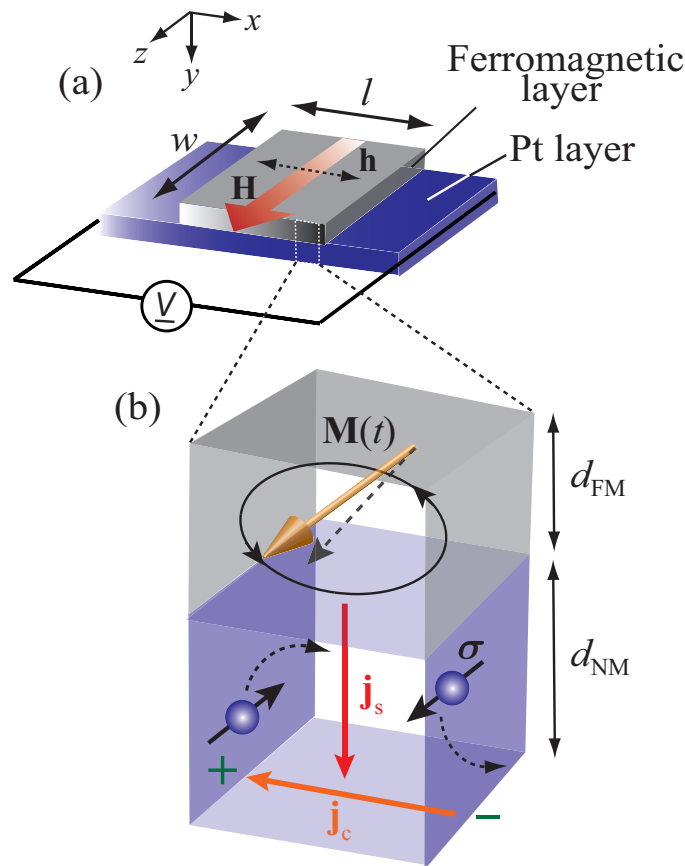


図 3.1 (a) 強磁性金属/Pt 複合膜の模式図。 $\mathbf{H}$ 、 $\mathbf{h}$ 、 $l$ 、 $w$  はそれぞれ外部直流磁場、マイクロ波磁場、強磁性金属/Pt 複合膜の長さ、幅を表している。(b) スピンポンピングによるスピン流生成と逆スピンホール効果の模式図。 $\mathbf{J}_c$ 、 $\mathbf{J}_s$ 、 $\sigma$ 、 $d_{\text{NM}}$ 、 $d_{\text{FM}}$  はそれぞれ逆スピンホール効果によって生成される電流密度、スピン流密度の空間成分、スピン流密度のスピン分極、Pt 層及び強磁性層の膜厚を表している。

図 3.2 に測定結果の一つである  $\text{Ni}_{64}\text{Fe}_{36}$ /Pt 薄膜を用いた時の強磁性共鳴による微分吸

収曲線 (図 3.2 (a)) 及びスピンポンピングによって Pt 層に生じる逆スピンホール効果による起電力 (図 3.2 (b)) を示した。測定試料に照射したマイクロ波の周波数は 9.44 GHz であり、同時に試料面内に外部直流磁場を印加した。マイクロ波の強度は 100 mW にして測定を行った。この試料の長さ  $l$  と幅  $w$  はそれぞれ 1.2 mm、0.4 mm である。 $I$  はマイクロ波吸収強度であり、ESR 装置はロックイン法を用いて測定を行っているため、スペクトル形状は  $I$  を  $H$  で微分した形となっている。

共鳴磁場  $H_{\text{FMR}}$  付近に起電力信号が観測され、この起電力スペクトルはローレンツ関数により再現された。逆スピンホール効果によって生成される起電力  $V_{\text{ISHE}}$  は、起電力スペクトルのローレンツ成分の高さとして見積もった。ローレンツ成分の高さを逆スピンホール効果による起電力スペクトル  $V_{\text{ISHE}}$  とした理由は、強磁性層に由来する異常ホール効果による成分と分離するためである。異常ホール効果に起因する起電力は、マイクロ波の電場成分  $\mathbf{e}(t)$  とそれに垂直な磁場成分  $\mathbf{m}(t)$  によるもので、 $\mathbf{e}(t) \times \mathbf{m}(t)$  方向に異常ホール効果による起電力が生じるはずである。 $\mathbf{e}(t)$  が  $\sin \omega t$ 、 $\mathbf{m}(t)$  が  $\sin(\omega t + \phi)$  で時間的に振動しているとすると、異常ホール効果による起電力の大きさは、 $(1/2)[\cos \phi - \cos(2\omega t + \phi)]$  と直流成分をもつ。印加している直流磁場の大きさが共鳴磁場より高磁場側になると、磁化歳差運動の位相が  $\pi$  ずれるため、異常ホール効果の符号が逆になる。異常ホール効果による起電力は図 2.3 (a) のような形状になり、逆スピンホール効果による起電力は図 2.3 (b) のような形状になる。

強磁性層の磁化は外部直流磁場  $H$  とマイクロ波の角周波数  $\omega = 2\pi f$  ( $f$ : マイクロ波の周波数) が強磁性共鳴条件 [74]

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_{\text{FMR}} + 4\pi M_s)H_{\text{FMR}} \quad (3.2.1)$$

を満たすときにスピンポンピングによって、スピン流が常磁性層へと定常的に注入される。ここで、 $4\pi M_s$  は強磁性層の飽和磁化である。Tserkovnyak らのスピンポンピングの標準模型において、磁化ダイナミクスによって生成されるスピン流密度の DC 成分  $j_s$  は (1.3.5) 式の実数成分を抽出することにより、

$$j_s = \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} \frac{\hbar}{4\pi} g_r^{\uparrow\downarrow} \frac{1}{M_s^2} \left[ \mathbf{M}(t) \times \frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} \right]_z dt \quad (3.2.2)$$

と表せる [47]。ここで、 $\gamma$ 、 $\hbar$ 、 $g_r^{\uparrow\downarrow}$ 、 $\mathbf{M}(t)$  はそれぞれ磁気回転比、Dirac 定数、実効的なミ

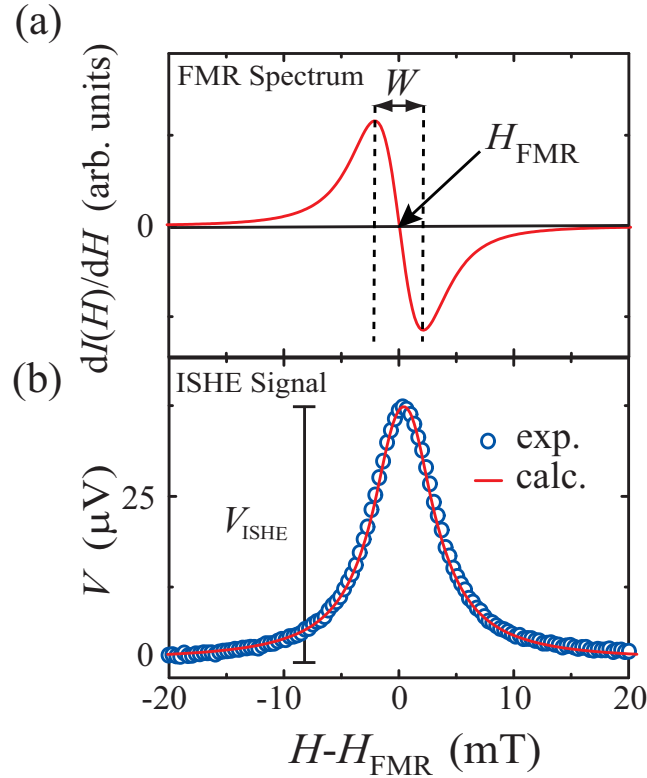


図 3.2 (a)  $\text{Ni}_{64}\text{Fe}_{36}/\text{Pt}$  薄膜におけるマイクロ波吸収スペクトル  $dI(H)/dH$ 。  $I$  はマイクロ波吸収強度、  $H_{\text{FMR}}$  は共鳴磁場、  $W$  は吸収スペクトルのピーク間線幅である。この試料の長さ  $l$  と幅  $w$  はそれぞれ 1.2 mm、0.4 mm である。(b)  $\text{Ni}_{64}\text{Fe}_{36}/\text{Pt}$  薄膜における起電力  $V$  の磁場  $H$  依存性。青丸は測定値であり、実線はローレンツ関数を用いたフィッティング結果である。  $V_{\text{ISHE}}$  は逆スピンホール効果による起電力の大きさを表している。

キシングコンダクタンス、磁化を表している。  $[\mathbf{M}(t) \times d\mathbf{M}(t)/dt]_z$  は、  $\mathbf{M}(t) \times d\mathbf{M}(t)/dt$  の  $z$  成分である。  $z$  軸は図 3.1 (a) において定義されている。

常磁性層に注入されたスピン流は逆スピンホール効果によって電流へと変換されるが、スピン流-電流変換効率であるスピンホール角  $\theta_{\text{SHE}}$  を用いて、

$$\mathbf{j}_c = \theta_{\text{SHE}} \left( \frac{2e}{\hbar} \right) \mathbf{j}_s \times \boldsymbol{\sigma} \quad (3.2.3)$$

と記述できる [23, 24, 43–73]。ここで  $e$  は素電荷を表す。この電流を常磁性層側で起電力として検出することにより、生成されるスピン流の大きさを見積もることができる。



### 3.3 スピンポンピングによる強磁性共鳴スペクトルと逆スピンホール効果による起電力

スピンポンピングによって生成されるスピン流は、強磁性金属のどのような物質パラメータによって決定づけられるのかを確かめるために、強磁性金属を用いてスピンポンピングによるスピン流生成の測定を行った。本研究では、起電力の比較のために、強磁性金属として NiFe 合金及び Co を用いた。はじめに SiO<sub>2</sub> 基板上に成膜した Pt 薄膜 10nm に強磁性金属 10nm[Ni<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ ), Co] を成膜した時のマイクロ波吸収スペクトル  $dI(H)/dH$  及び逆スピンホール効果による起電力スペクトル  $V$  の測定結果を図 3.3(a) 及び図 3.3(b) に示した。この時外部直流磁場は試料面に平行な方向に印加した。マイクロ波の強度は 100 mW にして測定を行った。

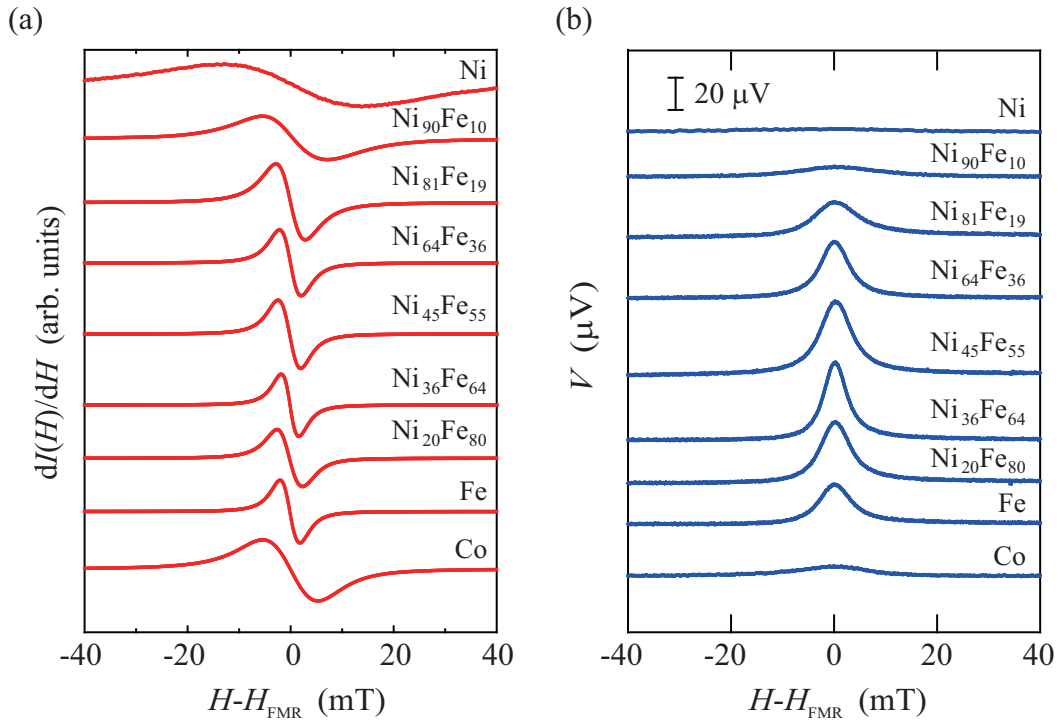


図 3.3 (a) 強磁性金属 [Ni<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ ), Co]/Pt 薄膜におけるマイクロ波吸収スペクトル  $dI(H)/dH$ 。 (b) 強磁性金属 [Ni<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ ), Co]/Pt 薄膜における起電力  $V$  の外部磁場  $H$  依存性。

図 3.3(b) の結果から強磁性金属を変えて逆スピンホール効果による起電力を測定すると、起電力の大きさ  $V_{\text{ISHE}}$  は系統的に変化することがわかった。これは強磁性金属の物質パラメーターが生成されるスピン流に影響を与えることを示している。

### 3.4 強磁性金属/Pt 薄膜における強磁性共鳴の外部磁場角度依存性

Ando らによると、強磁性金属/常磁性金属二層膜において逆スピンホール効果による起電力の試料面外の磁場角度依存性を調べることによって、現象論的なスピンポンピングと逆スピンホール効果を実験的に検証できる [44]。この事を踏まえて、各試料において外部直流磁場の印加角度を変化させた場合を考えてみる。この時の試料の模式図を図 3.4 (a) に示す。外部磁場  $\mathbf{H}$  を薄膜面の法線方向から  $\theta$  の角度で加えた場合の強磁性金属薄膜における磁化ダイナミクスを考える。図 3.4 (b) に示すように座標系を設定し、 $z$  軸周りを磁化  $\mathbf{M}(t) = \mathbf{M} + \mathbf{m}(t)$  が歳差運動している状況を考える。 $\mathbf{M}$  は時間依存しない磁化の成分、 $\mathbf{m}$  は歳差運動を表す磁化の振動成分である。薄膜面の法線方向から測った磁化の角度を  $\phi$  とする。 $\theta$  と  $\phi$  は基本的には揃わないが、これは薄膜面に対して垂直方向に生じる強い反磁場によるものである。

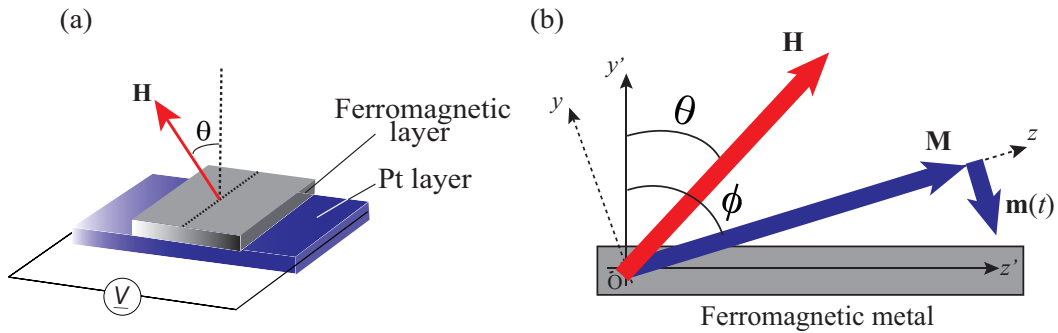


図 3.4 (a) 強磁性金属/Pt 二層膜試料と外部直流磁場の関係の模式図。薄膜面の法線方向と外部磁場  $\mathbf{H}$  との間の角度を  $\theta$  とした。(b) 強磁性金属薄膜における磁場角度と磁化角度の関係。 $\mathbf{H}$  は外部磁場、 $\mathbf{M}$ 、 $\mathbf{m}$  はそれぞれ磁場の平行成分、振動成分を表す。 $\theta$ 、 $\phi$  はそれぞれ磁場角度、磁化角度を表す。

まず (1.3.1) 式の平衡状態を考えることで、 $\mathbf{H}$ 、 $\theta$ 、 $\phi$  の関係について評価する。 $\mathbf{M}(t) = \mathbf{M} = (0, 0, M_s)$  とし、有効磁場として外部静磁場  $\mathbf{H}$ 、平衡状態の磁化  $\mathbf{M}$  による反磁場

$\mathbf{H}_M$  を考え、 $\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + \mathbf{H}_M$  とする。ここでより

$$\begin{aligned}\mathbf{H} &= H \begin{pmatrix} 0 \\ \sin(\phi - \theta) \\ \cos(\phi - \theta) \end{pmatrix} \\ \mathbf{H}_M &= -4\pi M_s \cos \phi \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \phi \\ \cos \phi \end{pmatrix}\end{aligned}\quad (3.4.1)$$

である。平衡状態では  $\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{0}$  が成り立つ。これより (3.4.1) 式から

$$2H \sin(\phi - \theta) + 4\pi M_s \sin 2\phi = 0 \quad (3.4.2)$$

が得られる。これより  $H$  と  $\theta$  から  $\phi$  を評価できる。

次に強磁性共鳴状態になる条件を求めていく。有効磁場  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  に時間変動する磁化  $\mathbf{m}(t)$  による反磁場  $\mathbf{H}_m$  を考える。すなわち  $\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + \mathbf{H}_M + \mathbf{H}_m$  とする。ここで図 3.4 (b) より

$$\mathbf{H}_m = -4\pi m_y \sin \phi \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \phi \\ \cos \phi \end{pmatrix} \quad (3.4.3)$$

である。 $\mathbf{M}$  を軸とした歳差運動を考え、 $\mathbf{m}(t) = (m_x e^{i\omega t}, m_y e^{i\omega t}, 0)$  とする。 $\omega = 2\pi f$  であり、 $f$  はマイクロ波の振動数である。(1.3.1) 式に  $\mathbf{M}(t) = \mathbf{M} + \mathbf{m}(t) = (m_x e^{i\omega t}, m_y e^{i\omega t}, M_s)$  及び  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  を代入し、(3.4.2) 式を用いて緩和項と  $m_x, m_y$  の二次以上の項を無視すると、共鳴条件

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_{\text{FMR}} \cos(\theta - \phi) - 4\pi M_s \cos 2\phi)(H_{\text{FMR}} \cos(\theta - \phi) - 4\pi M_s \cos^2 \phi) \quad (3.4.4)$$

が得られる。ここで  $H_{\text{FMR}}$  は共鳴磁場である。共鳴磁場とは強磁性共鳴が起きた時の磁場の大きさある。薄膜面に対し垂直に磁場を加えた場合 ( $\theta = 0^\circ$ )、磁化は磁場方向を向き  $\theta = \phi = 0^\circ$  となるので、(3.4.4) 式から

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_{\text{FMR}}^{\theta=0^\circ} - 4\pi M_s)^2 \quad (3.4.5)$$

となる。また薄膜面に対し平行に磁場を加えた場合 ( $\theta = 90^\circ$ ) も磁化は磁場方向を向き、

$\theta = \phi = 90^\circ$  となるので、(3.4.4) 式から

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_{\text{FMR}}^{\theta=90^\circ} + 4\pi M_s) H_{\text{FMR}}^{\theta=90^\circ} \quad (3.4.6)$$

が得られる。 $\gamma = g\mu_B/\hbar$  の関係を使い、 $\theta=0^\circ$ 、 $90^\circ$  として測定した強磁性共鳴の共鳴磁場及び(3.4.5)、(3.4.6) 式から  $g$  因子と飽和磁化  $4\pi M_s$  を求めることができる。

実際に測定で用いた9種類の強磁性金属  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  ( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ )、Co/Pt 複合膜において、外部磁場角度を変えながら共鳴磁場の値を測定した。データは磁場角度を  $15^\circ$  刻みで求めたが、 $0^\circ$  付近は変化が大きいと予測して  $5^\circ$  刻みで求めた。

Ni,  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ ,  $\text{Ni}_{90}\text{Fe}_{10}$  の場合は測定による共鳴磁場から(3.4.5)、(3.4.6) 式より  $4\pi M_s$  を求めることができた。この  $4\pi M_s$  を用いて(3.4.2) 式と(3.4.4) 式の連立方程式を解くことで、各磁場角度  $\theta$  での共鳴磁場  $H_{\text{FMR}}$  の計算値と磁化角度  $\phi$  を評価できる。しかしこの二つの強磁性体以外は  $\theta=0^\circ$  での共鳴磁場を測定出来なかった。理由としては ESR 装置の性能上、1.2 T までしか外部磁場を印加することができず、 $\theta=0^\circ$  における共鳴磁場はそれ以上の値を示すからである。この様な場合、(3.4.5) と(3.4.6) 式から  $4\pi M_s$  を求められなくなる。

そこで、 $g$  因子として文献値を用い、算出した  $\gamma$  の値から  $4\pi M_s$  を求めた。この値を(3.4.2)、(3.4.4) 式に代入して各  $\theta$  での  $H_{\text{FMR}}$  の計算値と  $\phi$  を求めた。

実際に求めた強磁性金属  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  ( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ )、Co の磁場角度  $\theta$  と磁化角度  $\phi$  の関係を図 3.5 に示した。図 3.5 に着目すると、例えば  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  に比べて Fe は磁化角度が磁場角度に追従しておらず、反磁場の影響が大きいことがわかる。

また各強磁性金属薄膜における磁場角度  $\theta$  と計算より求められた共鳴磁場  $H_{\text{FMR}}$  の関係を曲線として表し、そこに実際の測定値である各  $\theta$  での  $H_{\text{FMR}}$  をプロットした。この結果は図 3.6 に示した。 $g$  因子はなるべくこの曲線にフィットする様に設定した。実際に  $\text{Ni}_{45}\text{Fe}_{55}$ ,  $\text{Ni}_{20}\text{Fe}_{80}$ , Fe の場合は全て同じ  $g$  因子を設定したが、曲線にフィットしていることがわかる。本研究で用いた強磁性金属の内、 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  は結晶磁気異方性が小さな物質として知られている。しかし他の強磁性金属は結晶磁気異方性を無視することができるか検討の必要がある。共鳴磁場の磁場角度依存性は結晶磁気異方性を考えなければ(3.4.2)、(3.4.4) 式の解で与えられる。その意味で図 3.6 の結果は(3.4.2)、(3.4.4) 式の結果を十分

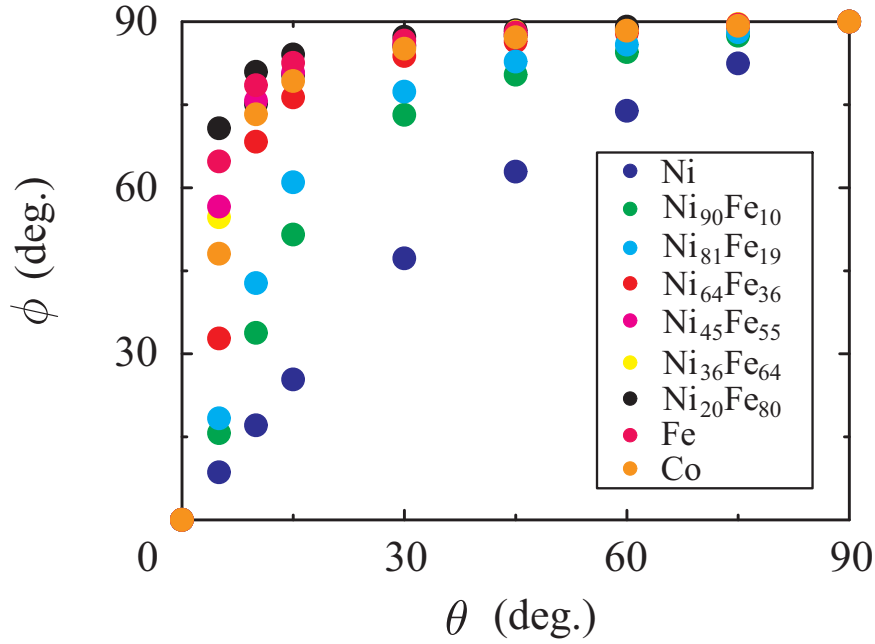


図 3.5 強磁性金属 ( $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  ( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ ), Co) における磁場角度  $\theta$  と磁化角度  $\phi$  の関係。

に再現出来る。よって本研究で用いた強磁性金属の面外の外部磁場に対する結晶磁気異方は十分に無視できる。

これまでの測定結果から得られた 9 種類の強磁性金属

$[\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  ( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ ), Co]/Pt 複合膜の飽和磁化  $4\pi M_s$ 、 $g$  因子、強磁性共鳴スペクトルと (2.2.5) 式から求められる緩和定数  $\alpha$  を表 3.1 にまとめた。

### 3.5 スピンポンピング誘起生成スピン流の NiFe 合金組成比依存性

スピンポンピングによるスピン流生成が強磁性体の飽和磁化等のマクロな物質パラメータによって決定づけられているのか、あるいは強磁性体の電子構造の詳細によって決定づけられているのかは未解明である。電子構造がスピンポンピングに大きな影響を与えている可能性を考えるにあたって、NiFe 合金を用いることが有効である。NiFe 合金は Ni と Fe の組成を変化させていくと、up spin と down spin のフェルミエネルギーにおける状態密度の大きさが途中で逆転することで知られている。実際に NiFe 合金の様々な組成

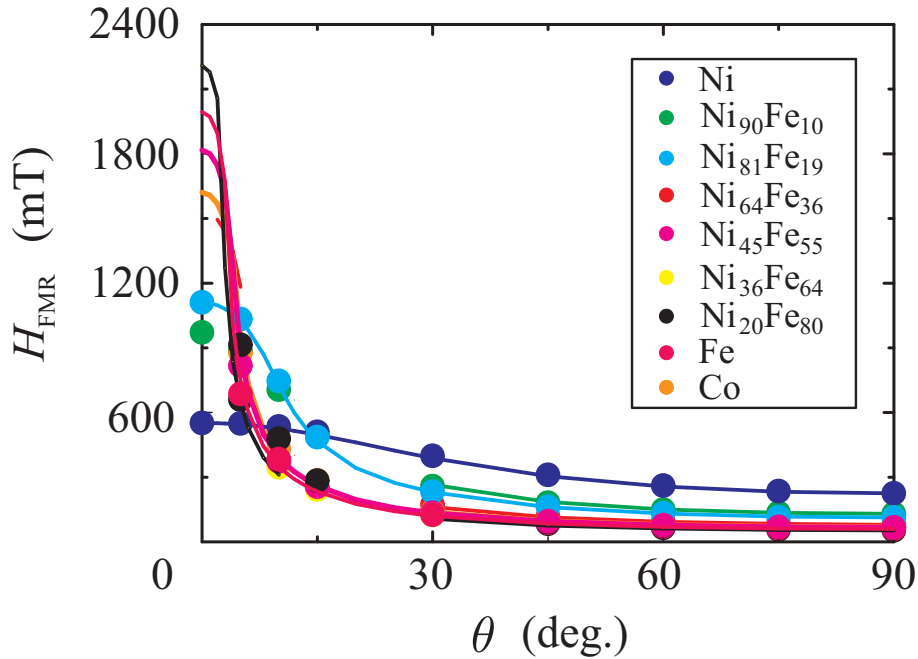


図 3.6 各強磁性金属/Pt 薄膜における磁場角度  $\theta$  と共鳴磁場  $H_{\text{FMR}}$  の関係. 全ての試料において曲線と測定結果のプロットがフィットしていることがわかる。

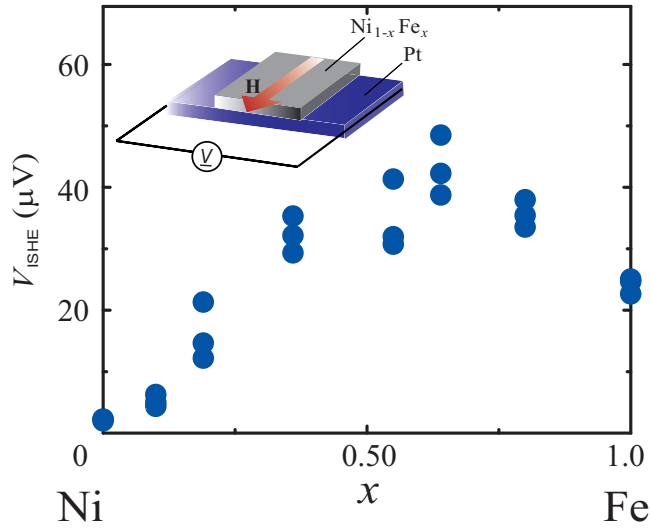
において、個々の原子の周りの電子状態に着目して、金属の電子状態を扱うコヒーレント・ポテンシャルの方法によって求められている [75, 76]。Ni と Fe では磁性を担うキャリアが電子・ホールと別々であるので、スピンポンピングによるスピン流生成に何らかの影響を与えている可能性が考えられる。さらに室温で強磁性を示す遷移金属である Co を加えて系統的な測定を行った。

今回の測定では、磁場は全ての試料を薄膜面内 ( $\theta=90^\circ$ ) に印加した。NiFe 合金の組成は図 3.3 に載っているものと同じく  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  ( $x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1$ ) の 8 種類を用いた。図 3.3(b) の結果を用いて、起電力  $V_{\text{ISHE}}$  の強磁性金属  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  の組成  $x$  依存性を図 3.7 に示した。この結果から  $V_{\text{ISHE}}$  と  $x$  の間には単調な変化はないが、 $V_{\text{ISHE}}$  は大きな変化を示していることがわかった。

しかし、 $V_{\text{ISHE}}$  は強磁性金属及び常磁性金属の抵抗にも大きく依存する量であるので、生成スピン流の定量及び比較を行うためには違う解析が不可欠である。そのため、強磁性金属/Pt 界面において生成されるスピン流について、測定から得られる  $V_{\text{ISHE}}$  を用いて評価を行う必要がある。そのため強磁性体/常磁性体複合膜におけるスピン流生成のモデルを組んだ。

表 3.1 測定から得られた各強磁性体金属の飽和磁化  $4\pi M_s$ 、 $g$  因子、緩和定数  $\alpha$  の値。

	$4\pi M_s$ [T]	$g$	$\alpha$
Ni/Pt	0.231	2.10	0.0712
Ni <sub>90</sub> Fe <sub>10</sub> /Pt	0.418	2.19	0.0354
Ni <sub>81</sub> Fe <sub>19</sub> /Pt	0.791	2.11	0.0149
Ni <sub>64</sub> Fe <sub>36</sub> /Pt	1.14	2.11	0.01145
Ni <sub>45</sub> Fe <sub>55</sub> /Pt	1.49	2.10	0.0105
Ni <sub>36</sub> Fe <sub>64</sub> /Pt	1.80	2.11	0.00921
Ni <sub>20</sub> Fe <sub>80</sub> /Pt	1.89	2.10	0.0105
Fe/Pt	1.67	2.10	0.0158
Co/Pt	1.31	2.20	0.0299


 図 3.7 起電力  $V_{\text{ISHE}}$  の強磁性金属  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  の組成  $x$  依存性。 $V_{\text{ISHE}}$  と  $x$  の間には単調な変化はないが、系統的な変化があることがわかる。各強磁性金属に対し、3 つの試料を用いた。

### 3.6 強磁性金属/Pt 界面において生成されるスピン流の導出

強磁性体/常磁性体二層膜において、常磁性層に注入されたスピン流  $j_s(y)$  はスピンの拡散によって  $y$  方向に減衰していく (図 3.8 (a) 参照)。このとき  $y$  方向におけるスピン流

$j_s(y)$  は

$$j_s(y) = \frac{\sinh[(d_{\text{NM}} - y)/\lambda_{\text{NM}}]}{\sinh(d_{\text{NM}}/\lambda_{\text{NM}})} j_s^0 \quad (3.6.1)$$

と表せる。ここで、 $j_s^0$  は強磁性体/常磁性体界面において生じるスピン流である。また、 $d_{\text{NM}}$  と  $\lambda_{\text{NM}}$  はそれぞれ常磁性体の膜厚及び、常磁性体のスピン拡散長である。 $j_s(y)$  は常磁性体中で逆スピンホール効果によって  $V_{\text{ISHE}}$  に変換されるはずである。 $j_s(y)$  と  $V_{\text{ISHE}}$  の間の関係は電流源を用いた等価回路モデルによって求めることが可能である (図 3.8 (b))。図 3.8 (b) にもあるように、逆スピンホール効果によって生成される電流  $I_c$  を  $I_c \equiv l d_{\text{NM}} \langle j_c \rangle$  と定義する。 $l$  は強磁性層の長さで、 $\langle j_c \rangle$  は電流密度の時間平均である。

図 3.8 (b) にある等価回路モデルを用いることによって、 $V_{\text{ISHE}}$  は

$$V_{\text{ISHE}} = \frac{R_{\text{FM}} R_{\text{NM}}}{(R_{\text{FM}} + R_{\text{NM}}) I_c} = \frac{w \langle j_c \rangle}{\sigma_{\text{NM}} + (d_{\text{FM}}/d_{\text{NM}}) \sigma_{\text{FM}}} \quad (3.6.2)$$

となる [47]。ここで、 $\sigma_{\text{NM}}$ 、 $\sigma_{\text{FM}}$ 、 $R_{\text{NM}}$ 、 $R_{\text{FM}}$ 、 $d_{\text{FM}}$  及び  $w$  はそれぞれ常磁性体、強磁性体の電気伝導度、常磁性体、強磁性体の抵抗、強磁性体の膜厚及び強磁性層の幅である。(3.6.1) 式を用いることによって、電流密度の時間平均  $\langle j_c \rangle$  を

$$\langle j_c \rangle \equiv \frac{1}{d_{\text{NM}}} \int_0^{d_{\text{NM}}} j_c(y) dy = \theta_{\text{SHE}} \left( \frac{2e}{\hbar} \right) \frac{\lambda_{\text{NM}}}{d_{\text{NM}}} \tanh \left( \frac{d_{\text{NM}}}{2\lambda_{\text{NM}}} \right) j_s^0 \quad (3.6.3)$$

とおける。ここで  $\theta_{\text{SHE}}$  は常磁性金属のスピンホール角を指す。(3.6.3) 式はスピン流  $j_s(y)$  が逆スピンホール効果によって電流  $j_c(y)$  に変換されるときの関係式  $j_c(y) = \theta_{\text{SHE}} (2e/\hbar) j_s(y)$  を用いた。(3.6.3) 式を用いて逆スピンホール効果による起電力  $V_{\text{ISHE}}$  を求めると、

$$V_{\text{ISHE}} = \left[ \frac{w \theta_{\text{SHE}} \lambda_{\text{NM}} \tanh(d_{\text{NM}}/2\lambda_{\text{NM}})}{d_{\text{NM}} \sigma_{\text{NM}} + d_{\text{FM}} \sigma_{\text{FM}}} \right] \left( \frac{2e}{\hbar} \right) j_s^0 \quad (3.6.4)$$

となる。

このモデルから (3.6.4) 式を用いて強磁性体/常磁性体界面に生じるスピン流  $j_s^0$  を求めることができる。図 3.9 に生成スピン流  $j_s^0$  の強磁性金属  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  の組成  $x$  依存性を示した。この結果から、図 3.7 同様  $j_s^0$  と  $x$  の間には単調な変化はないが、 $j_s^0$  は大きな変化を示していることがわかった。この非単調な  $j_s^0$  の結果から、生成スピン流は強磁性金属の組成以外のパラメーターによって決定づけられることが示唆される。



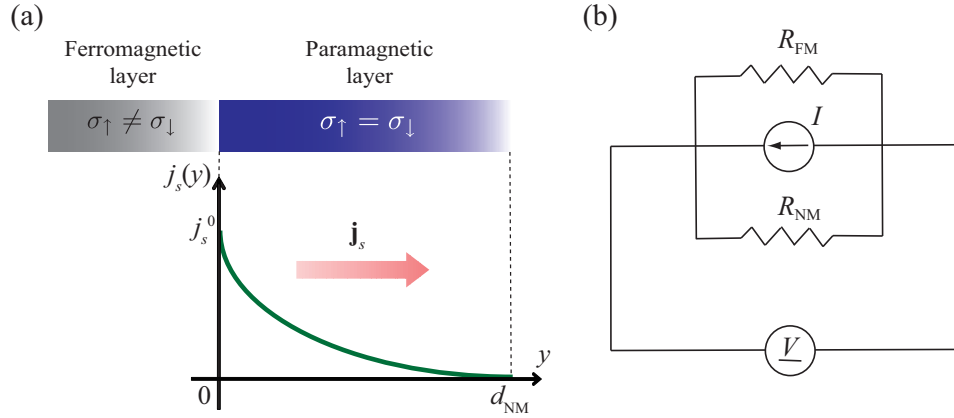


図 3.8 (a) 常磁性体中を流れるスピン流  $j_s(y)$ 。(3.6.1) 式に伴いスピン流は常磁性体中で減衰していく。(b) 電流源を用いた等価回路モデル。 $R_{NM}$ 、 $R_{FM}$ 、 $V$  はそれぞれ、常磁性体、強磁性体の抵抗、及び起電力である。

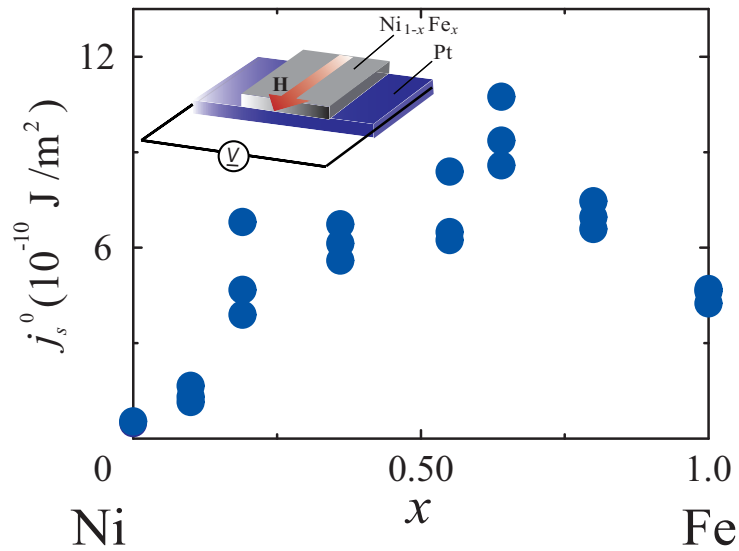


図 3.9 生成スピン流  $j_s^0$  の強磁性金属  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  の組成  $x$  依存性。 $j_s^0$  と  $x$  の間には単調な変化はないが、 $j_s^0$  は大きく変化することがわかる。各強磁性金属に対し、3 つの試料を用いた。

### 3.7 スピンポンピング誘起生成スピン流の強磁性金属の飽和磁化、緩和定数依存性

スピンポンピング誘起スピン流は磁化歳差運動の緩和による、スピン角運動量の散逸に比例している。よって、(1.3.1) 式にある様に、強磁性金属/常磁性金属界面において生成されるスピン流は飽和磁化  $4\pi M_s$  及び緩和定数  $\alpha$  に大きく依存するはずである。(3.6.4) 式から、 $j_s^0$  は、

$$j_s^0 = \left[ \frac{d_{\text{NM}}\sigma_{\text{NM}} + d_{\text{FM}}\sigma_{\text{FM}}}{w\theta_{\text{SHE}}\lambda_{\text{NM}} \tanh(d_{\text{NM}}/2\lambda_{\text{NM}})} \right] \left( \frac{\hbar}{2e} \right) V_{\text{ISHE}} \quad (3.7.1)$$

と変換される。今回の測定における実験条件として、Pt のスピンホール角  $\theta_{\text{SHE}} = 0.08$  [77]、 $d_{\text{FM}} = d_{\text{NM}} = 10$  nm、 $w = 1.2$  mm 及び Pt のスピン拡散長  $\lambda_{\text{NM}} = 10$  nm [68] を用い、(3.7.1) 式及び表 3.2 の結果を使い、各強磁性金属/Pt 二層膜における  $j_s^0$  を求めた。ここで Pt の電気伝導度の値として、四端子測定法から求めた  $\sigma_{\text{NM}} = 1.22 \times 10^6 (\Omega\text{m})^{-1}$  を用いた。ここで各強磁性金属/Pt 二層膜における  $4\pi M_s$  及び  $\alpha$  と  $j_s^0$  の関係を示したグラフを図 3.10 (a) 及び (b) に示した。この結果は、 $j_s^0$  と  $4\pi M_s$ 、 $\alpha$  の間には、系統的な変化がみられることがわかった。このことから、スピンポンピングは  $4\pi M_s$  や  $\alpha$  等のパラメーターが支配的で、電子構造の詳細はスピンポンピングによるスピン流生成には大きな寄与を与えていないと考えられる。

表 3.2 測定から得られる各強磁性体金属の電気伝導度  $\sigma_{\text{NM}}$  の値. 単位は  $[10^6 (\Omega\text{m})^{-1}]$

Ni	Ni <sub>90</sub> Fe <sub>10</sub>	Ni <sub>81</sub> Fe <sub>19</sub>	Ni <sub>64</sub> Fe <sub>36</sub>	Ni <sub>45</sub> Fe <sub>55</sub>	Ni <sub>36</sub> Fe <sub>64</sub>	Ni <sub>20</sub> Fe <sub>80</sub>	Fe	Co
2.33	2.68	3.50	1.60	1.79	2.06	1.69	1.56	2.98

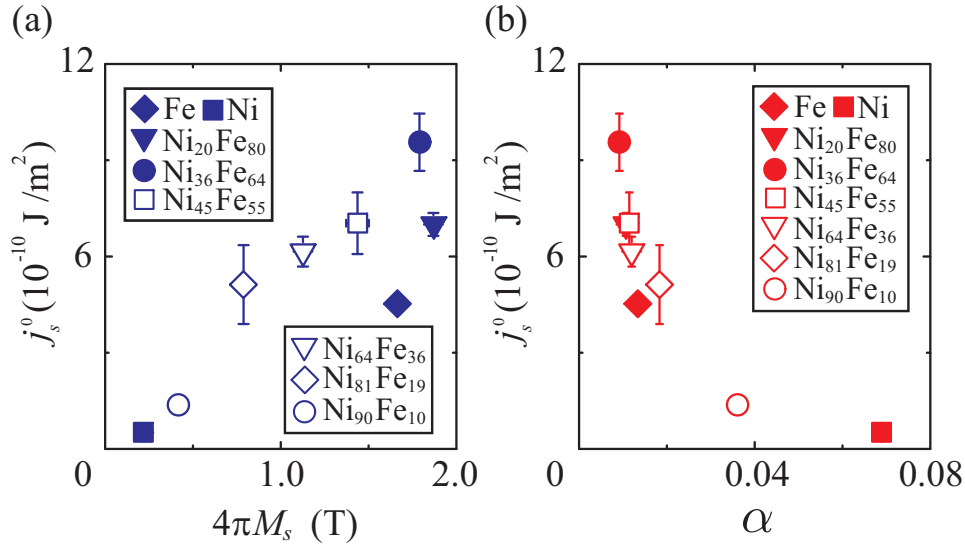


図 3.10 (a) 各強磁性金属/Pt 二層膜における  $4\pi M_s$  と  $j_s^0$  の関係。各物質において 3 つずつ測定を行い、エラーバーを取った。(b) 各強磁性金属/Pt 二層膜における  $\alpha$  と  $j_s^0$  の関係。各物質において 3 つずつ測定を行い、エラーバーを取った。

### 3.8 スピンポンピング誘起スピン流と強磁性金属の物質パラメーターの関係

#### 3.8.1 強磁性金属/Pt 二層膜と強磁性金属単層膜の強磁性共鳴スペクトル

Pt では一般的にスピン緩和が大きいことが知られている。もし強磁性金属単層膜よりも強磁性金属/Pt 二層膜の方がマイクロ波吸収スペクトルの線幅が広がっていたら、スピンポンピングが実際に試料で生じていることがわかる。そこで実際に測定で用いた 9 種類の強磁性金属  $[\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x (x = 0, 0.10, 0.19, 0.36, 0.55, 0.64, 0.80, 1), \text{Co}](10\text{nm})/\text{Pt}(10\text{nm})$  二層膜及びそれらの強磁性金属単層膜 (10nm) の強磁性共鳴スペクトルを測定して、ピーク間線幅を評価した。実際に  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Pt}$  二層膜と  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  単層膜でマイクロ波吸収スペクトルを測定した結果を図 3.11 に示した。

図 3.11 を参照すると、実際に  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Pt}$  二層膜の方が単層膜に比べて線幅  $W = \omega\alpha/\gamma$  が增大していることがわかる。これはスピンポンピングにより、スピン流が隣接している Pt 層に注入されていることを示している。つまり、Pt 層を流れるスピン流は、強

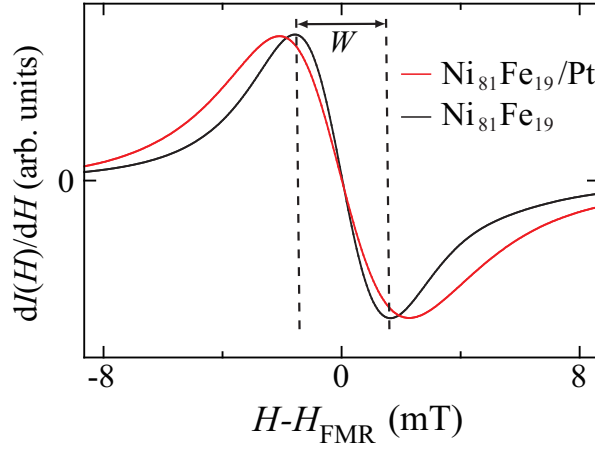


図 3.11  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Pt}$  二層膜及び  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  単層膜における強磁性共鳴スペクトルを測定した。線幅が  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Pt}$  二層膜の時の方が広がっていることがわかる。

磁性金属層からスピン角運動量を運び出すため、スピン緩和の大きな Pt との接合により、スピン角運動量散逸が増大していることを意味する。実際に常磁性金属におけるスピン緩和には、スピン軌道相互作用による寄与が大きく、Pt の様なスピン軌道相互作用の大きな常磁性金属を接合した場合には、強磁性金属層の磁化歳差運動の緩和は大きなものとなる [39]。これによってスピンポンピングによってスピン流が Pt 中に注入されていることを実際に確認できた。さらに他の強磁性金属においても同じような線幅の増大が確認できた。

これらの結果は Pt を接合させることで緩和定数  $\alpha$  が増大することを示している。ここで強磁性金属単体での緩和定数を  $\alpha_0$ 、強磁性体金属/Pt 二層膜での緩和定数を  $\alpha$ 、緩和定数の増加分を  $\Delta\alpha$  とおく。つまり  $\alpha = \alpha_0 + \Delta\alpha$  となる。(2.2.5) 式より、マイクロ波吸収スペクトルのピーク間線幅  $W$  から  $\alpha$  が求められる。同様に (2.2.5) 式から  $\Delta\alpha$  を求めることができる。Pt を接合することによって、スピン角運動量の散逸が増大するので、 $j_s^0$  と  $\Delta\alpha$  との間には相関関係があるはずである。そこで各強磁性金属/Pt 二層膜における  $\Delta\alpha$  と  $j_s^0$  の関係を示したグラフを図 3.12 に示した。この結果から  $j_s^0$  と  $\Delta\alpha$  の間には、系統的な変化があることがわかったが、それが支配的なパラメーターであることは明らかにはならなかった。

また、ミキシングコンダクタンスの実部  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  は、強磁性金属単体の線幅  $W_F$  及び強磁性

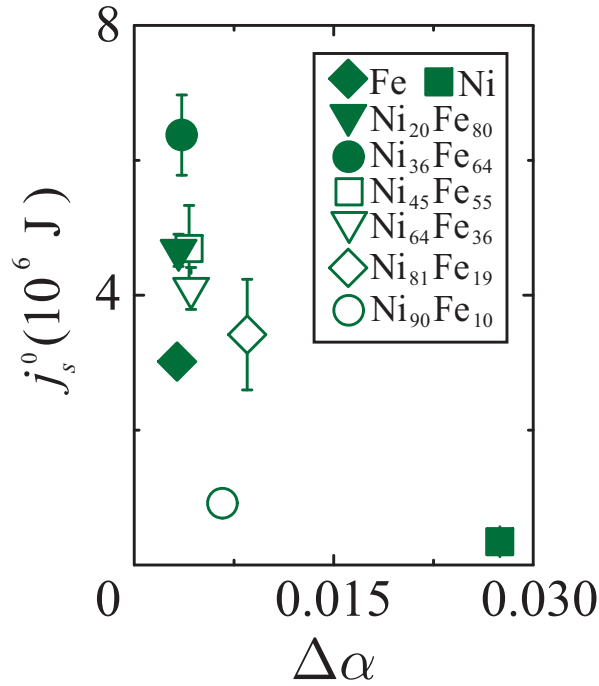


図 3.12 各強磁性金属/Pt 二層膜における  $\Delta\alpha$  と  $j_s^0$  の関係。各物質において 3 つずつ測定を行い、エラーバーを取った。

体金属/Pt 二層膜の線幅  $W_{F/N}$  を用いると、

$$g_r^{\uparrow\downarrow} = \frac{2\sqrt{3}\pi M_s \gamma d_{\text{FM}}}{g\mu_B \omega} (W_{F/N} - W_F) \quad (3.8.1)$$

と表せる [47]。ここで  $\mu_B$  はボーア磁子を表す。また、それぞれの強磁性体金属において、(2.2.5) 式から求めた緩和定数の増加分  $\Delta\alpha$ 、(3.8.1) 式から求めたミキシングコンダクタンス  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  をそれぞれ表 3.3 に示した。

### 3.8.2 生成スピン流の強磁性金属の物質パラメーター依存性

スピンポンピングの標準模型において、薄膜面内に磁場を印加した場合 ( $\theta = 90^\circ$ ) の生成されるスピン流の DC 成分  $j_s^0$  の大きさは (3.2.2) 式より計算を行うことができる。

図 3.4 (b) の状況で、マイクロ波磁場  $\mathbf{h}(t) = (he^{i\omega t}, 0, 0)$  を考え、磁化の振動成分  $\mathbf{m}(t) = (m_x e^{i\omega t}, m_y e^{i\omega t}, 0)$  を求める [44]。有効磁場として

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + \mathbf{H}_M + \mathbf{H}_m + \mathbf{h} \quad (3.8.2)$$

表 3.3 測定から得られる各強磁性体金属の緩和定数の増加分  $\Delta\alpha$ 、ミキシングコンダクタンス  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  の値。

	$\Delta\alpha$	$g_r^{\uparrow\downarrow} [\text{m}^{-2}]$
Ni/Pt	0.00283	$2.87 \times 10^{18}$
Ni <sub>90</sub> Fe <sub>10</sub> /Pt	0.000664	$1.38 \times 10^{18}$
Ni <sub>81</sub> Fe <sub>19</sub> /Pt	0.000859	$2.57 \times 10^{18}$
Ni <sub>64</sub> Fe <sub>36</sub> /Pt	0.000427	$2.50 \times 10^{18}$
Ni <sub>45</sub> Fe <sub>55</sub> /Pt	0.000413	$3.17 \times 10^{18}$
Ni <sub>36</sub> Fe <sub>64</sub> /Pt	0.000358	$3.29 \times 10^{18}$
Ni <sub>20</sub> Fe <sub>80</sub> /Pt	0.000334	$3.23 \times 10^{18}$
Fe/Pt	0.000322	$2.67 \times 10^{18}$
Co/Pt	0.0299	$2.59 \times 10^{18}$

を考え、 $\mathbf{M}(t) = \mathbf{M} + \mathbf{m}(t) = (m_x e^{i\omega t}, m_y e^{i\omega t}, M_s)$  を (1.3.1) 式に代入する。 $m_x$ 、 $m_y$  と  $\alpha$  の二次以上の項を無視して (3.4.2) 式を用いると、共鳴状態では

$$\tilde{H}^2 - \tilde{H} \left( \frac{\cos 2\phi + \cos^2 \phi}{\cos(\theta - \phi)} \right) + \frac{\cos 2\phi \cos^2 \phi}{\cos^2(\theta - \phi)} - \frac{\tilde{\omega}^2}{\cos^2(\theta - \phi)} = 0 \quad (3.8.3)$$

が得られる。ここで

$$\tilde{H}^2 = \frac{H}{4\pi M_s}, \quad \tilde{\omega} = \frac{\omega/\gamma}{4\pi M_s} \quad (3.8.4)$$

である。この解を  $H = H_{\text{FMR}}$  とし、磁場  $H$  は共鳴磁場  $H_{\text{FMR}}$  に近いと近似すると、歳差運動する磁化の振動成分  $m_x(t), m_y(t)$  は

$$\begin{aligned} m_x(t) &= \frac{h(i\omega\alpha + \tilde{H} \cos(\theta - \phi) - \cos 2\phi)}{4\pi \cos(\theta - \phi)[2\tilde{H} \cos(\theta - \phi) - (\cos^2 \phi + \cos 2\phi)]} \frac{e^{i\omega t}}{(\tilde{H} - H_{\text{FMR}}) + i \frac{\alpha\tilde{\omega}}{\cos(\theta - \phi)}} \\ m_y(t) &= \frac{-i\tilde{\omega}h}{4\pi \cos(\theta - \phi)[2\tilde{H} \cos(\theta - \phi) - (\cos^2 \phi + \cos 2\phi)]} \frac{e^{i\omega t}}{(\tilde{H} - H_{\text{FMR}}) + i \frac{\alpha\tilde{\omega}}{\cos(\theta - \phi)}} \end{aligned} \quad (3.8.5)$$

となる。ここで共鳴状態  $H = H_{\text{FMR}}$  について考え、(3.4.4) 式を用いて  $m_x(t), m_y(t)$  の

実部を求めると、

$$\begin{aligned} \text{Rem}_x(t) &= \frac{4\pi M_s \gamma \hbar [2\alpha \omega \cos \omega t + \left( 4\pi M_s \gamma \sin^2 \phi + \sqrt{(4\pi M_s)^2 \gamma^2 \sin^4 \phi + 4\omega^2} \right) \sin \omega t]}{8\pi \alpha \omega \sqrt{(4\pi M_s)^2 \gamma^2 \sin^4 \phi + 4\omega^2}} \\ \text{Rem}_y(t) &= -\frac{4\pi M_s \gamma \hbar \cos \omega t}{4\pi \alpha \sqrt{(4\pi M_s)^2 \gamma^2 \sin^4 \phi + 4\omega^2}} \end{aligned} \quad (3.8.6)$$

となる。以下では (3.8.6) 式を改めて  $m_x(t), m_y(t)$  と定義しなおす。

スピン流が流れる常磁性体は理想的なスピン吸収体を仮定し、back flow のスピン流がないものとした。(3.8.6) 式を (3.2.2) 式に代入することによって、強磁性共鳴状態における強磁性/常磁性複合薄膜系における生成スピン流の現象論的な表式を  $\phi$  の関数として以下のように求めることができる。

$$j_s(\phi) = \frac{g_r^{\uparrow\downarrow} \gamma^2 \hbar h^2 \left( 4\pi M_s \gamma \sin^2 \phi + \sqrt{(4\pi M_s)^2 \gamma^2 \sin^4 \phi + 4\omega^2} \right)}{8\pi \alpha^2 ((4\pi M_s)^2 \gamma^2 \sin^4 \phi + 4\omega^2)} \quad (3.8.7)$$

このとき薄膜面内に磁場を印加したときの表式 ( $\phi = 90^\circ$ ) を用いると、界面で生成されるスピン流  $j_s^0$  は、

$$j_s^0 = \frac{g_r^{\uparrow\downarrow} \gamma^2 \hbar h^2 \left( 4\pi M_s \gamma + \sqrt{(4\pi M_s)^2 \gamma^2 + 4\omega^2} \right)}{8\pi \alpha^2 ((4\pi M_s)^2 \gamma^2 + 4\omega^2)} \quad (3.8.8)$$

となる。また磁化歳差運動の面積  $S$  について考えてみると、 $S$  は  $S = \pi |m_x| |m_y|$  から求められる [45]。(3.8.6) 式から  $S$  を求めて、薄膜面内に磁場を印加した場合を考えてみると、

$$S = \frac{2\gamma^2 M_s^2 \hbar^2 \left( 4\pi M_s \gamma + \sqrt{(4\pi M_s)^2 \gamma^2 + 4\omega^2} \right)}{4\omega \alpha^2 ((4\pi M_s)^2 \gamma^2 + 4\omega^2)} \quad (3.8.9)$$

となる。ここで生成されるスピン流の大きさは磁化歳差運動の立体角  $\Omega = (1/M_s^2)S$  を用いて、(3.8.8)、(3.8.9) 式から

$$j_s^0 = \frac{g_r^{\uparrow\downarrow} \omega \hbar}{4\pi} \Omega \quad (3.8.10)$$

と記述できる。

(2.2.5)、(3.8.8) 及び (3.8.10) 式を用いると、 $j_s^0$  は、

$$j_s^0 = \frac{\omega d_{\text{FM}} M_s \Delta \alpha}{\gamma} \Omega \quad (3.8.11)$$

と表せる。つまり、今回膜厚は強磁性金属において一定であり、 $\gamma$  も物質によらずにほぼ一定であるので、 $j_s^0 \propto \Omega(4\pi M_s)\Delta\alpha$  であると評価できる。つまり界面において発生するスピン流の大きさは緩和定数の増加分、飽和磁化及び磁化歳差運動の立体角にのみ依存すると評価できる。

今回、(3.8.11) 式に関連するパラメーターである  $4\pi M_s$  及び  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  が単独で生成スピン流  $j_s^0$  を決定しているわけではないことを確かめる必要がある。そこで、(3.7.1) 式から算出できる  $4\pi M_s$  及び  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  の  $j_s^0$  依存性を図 3.13(a) 及び (b) に示した。

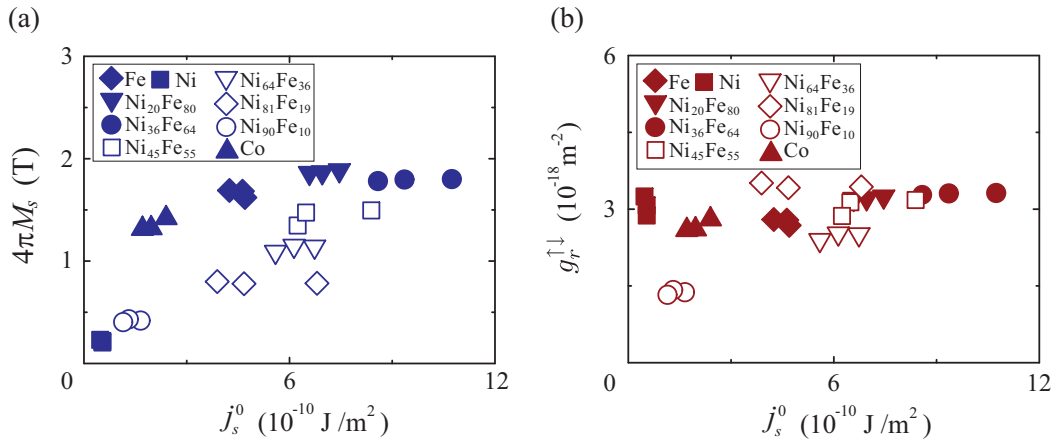


図 3.13 (a)  $4\pi M_s$  及び  $j_s^0$  の関係。 (b)  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  及び  $j_s^0$  の関係。一つの強磁性金属につき 3 つの試料を用いて測定を行った。

図 3.13 の結果から  $4\pi M_s$  及び  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  と  $j_s^0$  の間には非単調な関係にあることがわかった。このことから、 $j_s^0$  の評価については  $\Omega(4\pi M_s)\Delta\alpha$  について各強磁性金属について系統的に評価する必要がある。

そのため、測定から求められた逆スピンホール効果による起電力  $V_{\text{ISHE}}$  を用いて、(3.6.4) 式から算出した  $j_s^0$  及び、FMR 測定から求めることができる  $\Omega(4\pi M_s)\Delta\alpha$  を各強磁性金属/Pt 薄膜において比較した。(図 3.14 参照) このとき、マイクロ波の磁場振幅  $h$  は、マイクロ波の出力が 100 mW における値である  $h = 0.113 \text{ mT}$  を用いた。



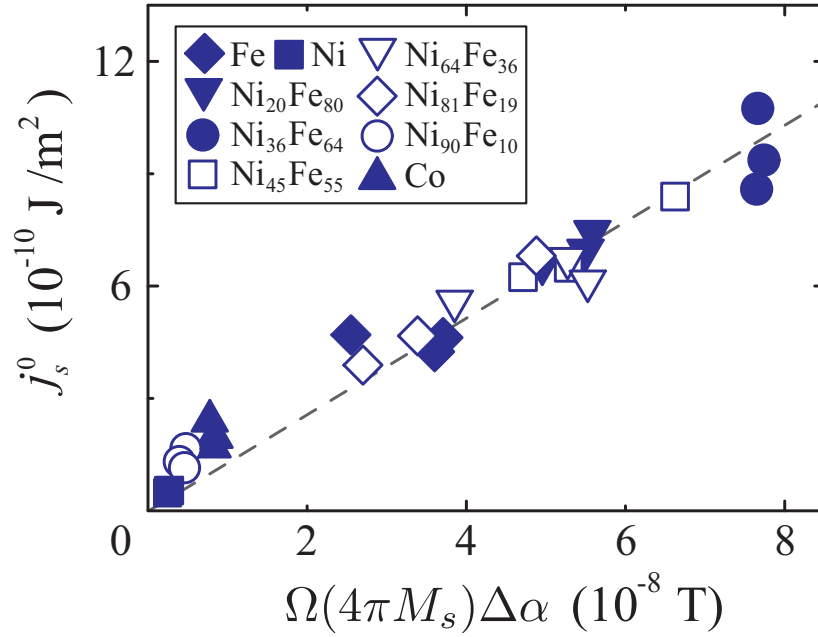


図 3.14  $j_s^0$  及び  $\Omega(4\pi M_s)\Delta\alpha$  の関係。一つの強磁性金属につき 3 つの試料を用いて測定を行った。点線は線形フィットを行ったときの結果を表している。

図 3.14 から、 $j_s^0$  と  $\Omega(4\pi M_s)\Delta\alpha$  の間には比例関係があることがわかる。このことは、スピンポンピングによって強磁性金属/常磁性金属界面で生成されるスピン流は、強磁性金属の物質パラメーターである飽和磁化  $4\pi M_s$ 、磁化歳差運動の立体角  $\Omega$  及び緩和定数の増加分  $\Delta\alpha$  から決定づけられることがわかる。この系では強磁性金属の電子構造の詳細がスピン流生成に大きな影響を与えているわけではないことがわかった。この結果を用いると実際にスピンポンピングによって生成されるスピン流の大きさは FMR 測定を行うことによって見積もることができる。これはスピントロニクス分野において、今後スピン流を用いたデバイス開発を行うにあたって大きな指針となりうる。

### 3.9 本章のまとめ

本章で得られた結論は以下の 2 点に集約される。

- 強磁性金属/Pt 二層膜において、様々な強磁性金属を用いて強磁性共鳴磁場の面外磁場角度依存性を測定した。その結果を、結晶磁気異方性の無い系を仮定した現象論的モデルを用いてフィッティングを行い、各強磁性金属/Pt 二層膜において、外

部磁場角度依存性を再現できた。

- 強磁性金属/Pt 二層膜において、スピンポンピングを用いて、生成されるスピン流の物質依存性を系統的に調べた。スピンポンピングにより強磁性体/Pt 界面で生成されるスピン流は、強磁性共鳴により測定可能な強磁性体の物質パラメーターによりスケーリングされることを示す結果を得た。この系では強磁性金属の電子構造の詳細がスピン流生成に大きな影響を与えないことがわかった。

## 第 4 章

# Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> におけるスピン波スピン流誘起電気分極の測定

本章では、Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (YIG) 内で励起したスピン波を用いた電気磁気効果について報告する。第 1 章でスピン波スピン流は、電荷の自由度が凍結した高抵抗な絶縁体においてもスピン角運動量を伝搬できることは既に述べた [57]。また、金属や半導体中で逆スピンホール効果を利用することによって、スピン流から電流への変換が可能である。本研究ではスピン波スピン流を用いて、電荷自由度がない絶縁体中でスピン流から電気分極へと変換するスピン-電気変換現象を観測し、強磁性強誘電体が発現する原理であるジャロシンスキー・守谷相互作用 (Dzyaloshinskii-Moriya interaction: DM 相互作用) の逆効果を用いた理論によりこの現象の説明を行なった。

### 4.1 スピン波スピン流誘起電気磁気効果

1.4 節でも述べたように磁気双極子が運動することで、磁気双極子の運動方向と双極子ベクトルの向きの垂直方向に電気分極が発生し、スピン流と電場の間の相関関係であるスピン-電気変換現象が存在することを表している。スピン-電気変換現象は電荷の自由度が存在する金属や半導体では、逆スピンホール効果としてスピン流検出手段の一つとして利用されている。しかしスピン-電気変換現象は電荷の自由度を伴わない純粋なスピンの流れでも実現されるはずであるが、直接的な観測はまだ行われてはいない。本研究ではスピン波によるスピン-電気変換現象を観測しようと試みた。そこで電荷の自由度を伴わな

いスピン波スピン流を YIG 上で励起し、逆スピンホール効果と同じ対称性で生じるスピン-電気変換現象の観測を試みた。そして絶縁体上においてもスピン流の電氣的な検出が可能であることを報告する。また今回検出された信号は、DM 相互作用の逆効果を考慮することによって説明を行えるので、それについてはじめに言及する。

#### 4.1.1 ノンコリニアスピン配列による電気分極誘起現象

スピン波はそれぞれのスピンがある相対角度を保ちながら、長周期の磁気秩序を形成している。近年、スピンがノンコリニア (非共線的) な磁気構造を有する磁性体であるペロブスカイト型 Mn 酸化物  $\text{TbMnO}_3$  において、巨大な電気分極が発現したことが 2003 年に Kimura らによって報告された [81]。  $\text{TbMnO}_3$  はスピンがらせんのように並ぶらせん磁気構造への磁気相転移に伴って強誘電性分極が発現する。また、  $\text{TbMnO}_3$  の強誘電性分極は  $b$  軸方向に磁場を印加することによって、  $c$  軸方向から  $a$  軸方向へと 90 度回転する現象が観測される。このような磁場誘起の強誘電相転移現象は誘電率の異常をもたらす。このような物質は強誘電性強誘電性と強磁性を両方兼ね揃えており、マルチフェロイックスと呼ばれる。マルチフェロイックスとしての性質が発現する物質は磁性と誘電性の性質から主に 3 つの種類に分類される。1 つ目は磁性と誘電性が独立した発現機構によって物質中で共存している場合であり、  $\text{BiMnO}_3$  [78] 等で発見されているが、磁性と誘電性の相関はあまり強くない。2 つ目は誘電性秩序により磁性が発現する場合であり、誘電性秩序による空間反転対称性の破れによって DM 相互作用を介して弱磁性を発現する。  $\text{Ni}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$  [79] 等で発見されている。3 つ目は本研究とも関係があるが、磁気秩序により誘電性を発現する場合である。空間反転対称性が破れるような長周期の磁気秩序があった場合、それによって電気分極が誘起される。  $\text{TbMnO}_3$  だけでなく、近年様々な物質において発見されている [81–89]。

磁気秩序によって電気分極が発現するメカニズムは主に 2 つあり、対称交換相互作用及び反対称交換相互作用が誘起する強誘電性に分かれている。対称交換相互作用により誘起される電気分極は、2 つのスピン  $\mathbf{S}_i$ 、 $\mathbf{S}_j$  の内積  $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$  に比例する。1.5 節で述べた超交換相互作用に軌道自由度の寄与を考慮すると、2 つの磁性イオン ( $M_1, M_2$ ) と陰イオン ( $X$ ) 間の交換相互作用の大きさは  $M - X$  間の距離及び結合角  $M_1 - X - M_2$  に依存する ((1.5.3) 式参照) [90]。  $M_1$  と  $M_2$  のスピンの配列が決定すると、スピンが平行か反平行かによって陰イオン  $X$  を中心にイオンが変位する。このとき、空間反転対称性を破るよう

に個々のイオンの変位が一様だと、電気分極が発現すると考えられている。対称交換相互作用による電気分極の発現が  $\text{Ca}_3(\text{Co}, \text{Mn})_2\text{O}_6$  や  $\text{GdFeO}_3$  等で議論されている [91, 92]。

それに対し、磁気秩序の反対称交換相互作用は 1.5 節で述べた DM 相互作用によるもので、誘起される電気分極は 2 つのスピン  $\mathbf{S}_i$ 、 $\mathbf{S}_j$  の外積  $\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$  に依存する。スピンの非共線的な磁気構造を持っているときに、DM 相互作用の逆プロセスを経て、結晶構造の対称性を破るようにイオンが変位して電気分極が発現する [93, 94]。このときの電気分極の方向はスピンの回転方向に依存している。このような電気分極発現は DM 相互作用の逆効果を経ているので、(inverse Dzyaloshinskii-Moriya: iDM) 相互作用とも呼ばれる (図 4.1 (b))。DM 相互作用は結晶の対称性が低いときに、スピンの非共線的な配置が安定になる効果なのに対し、iDM 相互作用はスピンの非共線的な配列を持ったときに、結晶の対称性を下げようとイオンが変位する現象であり、結果的に電気分極を誘起する。

iDM 相互作用の微視的な起源に関しては、Katsura らによって報告されている [93]。それは遷移金属の  $t_{2g}$  軌道と配位している酸素イオンの  $p$  軌道との重なりから、非共線的な磁気構造 (スピン  $\mathbf{S}_i$ 、 $\mathbf{S}_j$  の方向を向く単位ベクトル  $\mathbf{e}_i$ 、 $\mathbf{e}_j$ ) において次式で表せるような電気分極  $\mathbf{P}_{ij}$  が発現することを明らかにした。

$$\mathbf{P}_{ij} = \eta \mathbf{e}_{ij} \times (\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_j) \quad (4.1.1)$$

ここで、 $\mathbf{e}_{ij}$  は  $\mathbf{e}_i$ 、 $\mathbf{e}_j$  を結ぶ単位ベクトルであり、 $\eta$  はスピン軌道相互作用に依存する係数である。同様に強いフント結合を考慮した系や遷移金属の  $e_g$  軌道を取り入れた系についても計算が行われている [95, 96]。

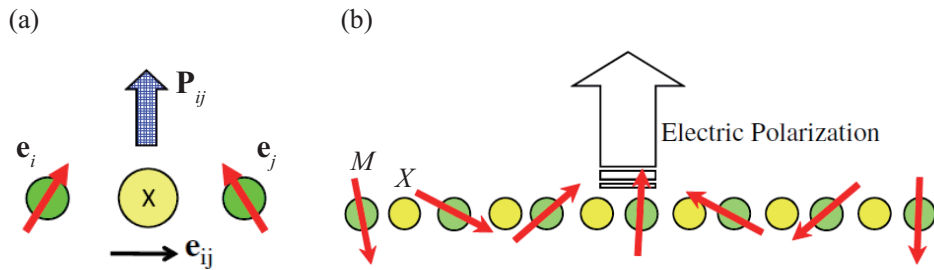


図 4.1 (a) 非共線的な磁気秩序において発現する電気分極の模式図。非共線的な磁気構造が電気分極を  $\mathbf{P}_{ij}$  誘起する [93]。X は陰イオンを表している。(b) 非共線的な磁気構造であるときに、DM 相互作用の逆プロセスから反転対称性を破るように陰イオンが変位して電気分極が発現する。M は磁気イオンを表す。

本研究では、スピン波が作り出す非共線的な磁気構造が iDM 効果により電気分極を誘起すると考え、スピン波スピン流を用いたスピン-電気変換現象の測定を行なった。

#### 4.1.2 スピン波によるスピン-電気変換現象の測定

図 4.1 (b) の磁気構造をスピン波の場合に当てはめると、スピンのねじれる方向にスピン波が進行波として伝搬していくことがわかる。すなわちスピン波スピン流は図 4.1 (b) で磁気イオン同士を結ぶ直線上に流れる。次に iDM 相互作用を用いた電気分極発現の起源をスピン波スピン流の場合に拡張する。

(4.1.1) 式をスピン波の系において適用するためには、スピンに関する連続体近似を行えばよい。ここで、格子間隔  $\mathbf{a}$  の原子上にスピン波が励起された場合を考えてみる。連続体近似を行うにあたって、(4.1.1) 式のスピン波の進行方向の単位ベクトル  $\mathbf{e}_{ij}$  をスピン波スピン流の空間成分をスピン波の進行方向の単位ベクトル  $\mathbf{j}_s$  に置き換える。また隣接する 2 つの座標  $\mathbf{r}$ 、 $\mathbf{r} + \mathbf{a}$  におけるスピンの単位ベクトル  $\mathbf{m}(\mathbf{r})$  及び  $\mathbf{m}(\mathbf{r} + \mathbf{a})$  を用いて  $\mathbf{m}(\mathbf{r} + \mathbf{a})$  を 1 次の項までテイラー展開を行うと、誘起される電気分極  $\mathbf{P}(\mathbf{r})$  は

$$\begin{aligned}\mathbf{P}(\mathbf{r}) &= \eta \mathbf{j}_s \times (\mathbf{m}(\mathbf{r}) \times \mathbf{m}(\mathbf{r} + \mathbf{a})) \\ &\simeq \eta \mathbf{j}_s \times \left( \mathbf{m}(\mathbf{r}) \times [\mathbf{m}(\mathbf{r}) + |\mathbf{a}| \nabla \cdot \mathbf{m}(\mathbf{r})] \right) \\ &= \eta |\mathbf{a}| \mathbf{j}_s \times (\mathbf{m}(\mathbf{r}) \times \nabla \mathbf{m}(\mathbf{r}))\end{aligned}\quad (4.1.2)$$

と記述できる。(4.1.2) 式を各座標  $\mathbf{r}$  について足し合わせると、スピン波が励起する電気分極を導出することができる。(4.1.2) 式の  $\mathbf{m} \times \nabla \mathbf{m}$  の部分がスピン波スピン流のスピン偏極方向にあたると考えると、(4.1.2) 式は逆スピンホール効果 [(1.4.2) 式] と同じ対称性をもつことがわかる。(4.1.2) 式について、空間成分及びスピン成分に関して成分表示を行うと、

$$P_k = \varepsilon_{kij} j_i^{M_\alpha} \varepsilon_{\alpha\beta\mu} m_\beta \nabla_j m_\mu \quad (4.1.3)$$

となる ( $i, j, k$ : 空間成分、 $\alpha, \beta, \mu$ : スピン成分、 $\varepsilon_{kij}, \varepsilon_{\alpha\beta\mu}$ : Levi-Civita の完全反対称テンソル)。ここで、 $P_k$  は電気分極、 $j_i^{M_\alpha}$  はスピン流を表す。このとき、 $\mathbf{j}_s$  と  $\mathbf{m} \times \nabla \mathbf{m}$  のスピン成分の方向が同一となるので、電気分極は空間成分のみをもつ。

生成される  $\mathbf{P}$  の大きさは (4.1.2) 式から、 $\mathbf{m} \times \nabla \mathbf{m}$  のスピンのねじれの大きさを表す部分が支配的になることがわかる。このとき、スピン波スピン流の空間方向  $\mathbf{j}_s$  を変えず

に、スピン  $\mathbf{m}$  方向のみを反転させた状況で  $\mathbf{m} \times \nabla \mathbf{m}$  の符号について考察する。図 4.2 に  $y$  軸方向に磁場  $H$  を印加したときのスピン波の配列を示した。それぞれのスピンは  $y$  軸まわりに歳差運動を行うことになる。図 4.2 (a) 及び (b) はそれぞれ磁場を  $+H$ 、 $-H$  印加したときのスピン波の個々のスピンの模式図を示した。(b) は青矢印で示したスピンの  $xz$  平面の成分のみを表した。

まずスピンの  $+y$  方向を向いている場合について考察する (図 4.2(a))。スピン波スピン流  $\mathbf{j}_s$  が  $+x$  方向に流れていると仮定すると、 $\mathbf{m} \times \nabla \mathbf{m}$  は  $x, y, z$  全ての成分をもつ。しかし、スピン波は各原子において、 $x, z$  成分に関してばらつきがある。すなわち  $\mathbf{m} \times \nabla \mathbf{m}$  の空間平均を取ると、結果的に dc 成分は  $+y$  成分のみが残存することがわかる。

同様にスピンの  $-y$  方向を向いている場合について考察すると、 $\mathbf{m} \times \nabla \mathbf{m}$  の空間平均は  $-y$  成分のみが残存するはずである。スピン波は時間的にスピンの向きが揺らいでいるが、隣接したスピン同士の相対位相は不変であるので、結果的に  $\mathbf{m} \times \nabla \mathbf{m}$  は有限に残ることが理解できる。

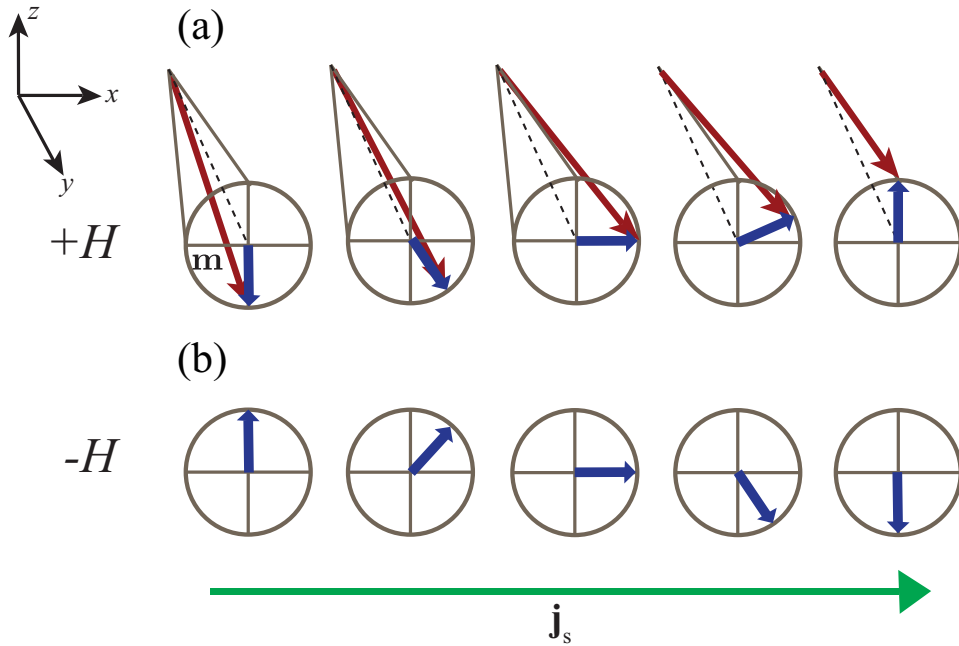


図 4.2  $y$  軸方向に磁場  $H$  を印加したときのスピン波の配列。(a) スピンが  $+y$  方向を向いている場合のスピン波。(b) スピンが  $-y$  方向を向いている場合のスピン波。

## 4.2 面内・面直磁場におけるスピン波スピン流誘起分極電流の測定

本研究では YIG 平板 ( $2 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$ ) の上に金属電極 [Au (75 nm)/Ti (10 nm)] を YIG の上下に成膜して、YIG を誘電体としたコンデンサーとした。そして YIG 上にスピン波を励起したときの電気分極  $\mathbf{P}$  の測定を行なった。図 4.3 に本研究における測定系に関する模式図を載せた。YIG の下に幅  $100 \mu\text{m}$  のマイクロ波導波路を敷き、マイクロ波磁場を導入した。このとき、マイクロ波導波路を YIG 平板の端の部分に設置した。これはスピン波の進行波を励起しやすくするためである。一部のスピンの歳差運動を起こしやすくなるので、スピンのねじれが構築しやすくなる。そして、直流磁場も印加し、磁化の歳差運動を励起した (図 4.3 (a))。本研究は、第 3 章と同じく強磁性共鳴を利用した方法ではあるが、磁化の一樣歳差モードの他に、一樣歳差モードの共鳴周波数の高周波及び低周波側にも、スピン波に由来する共鳴モードが励起される [12, 98, 99]。本研究でスピン波共鳴を利用して作り出したスピン波の振幅は、試料を一樣に励起したわけではないので、マイクロ波導波路を基点として指数関数的に減衰する。そして YIG をコンデンサーとして、電気分極  $\mathbf{P}$  が作り出す分極電流を検出した (図 4.3 (b))。

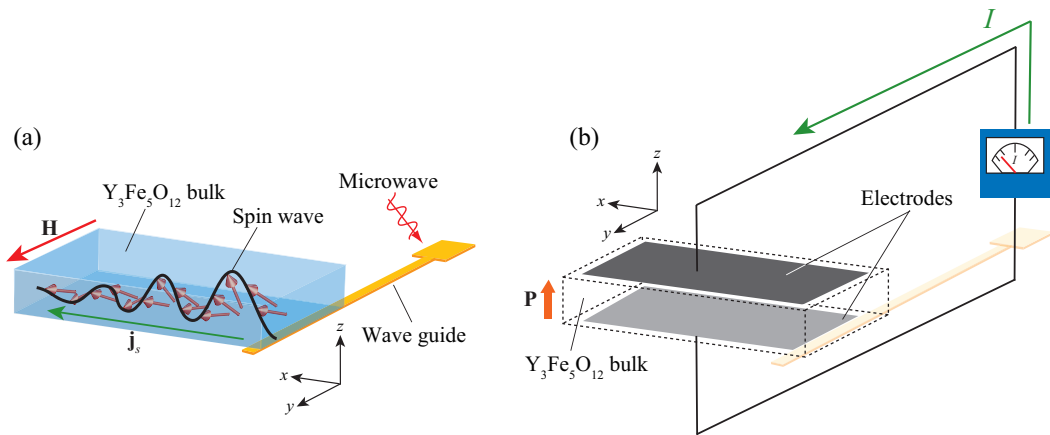


図 4.3 スピン波スピン流誘起分極電流の測定の模式図 (a) YIG 平板においてマイクロ波及び直流磁場  $\mathbf{H}$  を面内に印加し、スピン波共鳴を利用してスピン波スピン流  $\mathbf{j}_s$  を誘起した。磁場は面内方向 (+ $y$  方向) に印加した。(b) YIG に電極 [Au (75 nm)/Ti (10 nm)] を接合し、コンデンサーとし、誘起された電気分極  $\mathbf{P}$  による分極電流 (+ $z$  方向) を測定した。



本研究ではマイクロ波の周波数を 4 GHz から 8 GHz まで掃引しながら、電気分極による分極電流を測定した。マイクロ波周波数の掃引速度は 0.056 GHz/sec である。図 4.4 に外部直流磁場  $H=160$  mT を面内方向 (図 4.3 (a) の  $+y$  方向) に印加したときのマイクロ波吸収スペクトル及び誘起された分極電流  $I = dQ/dt$  (図 4.3 (b) の  $+z$  方向) の測定結果を示した。ここで  $Q$  はコンデンサーの表面に誘起された電荷を示している。このとき、印加したマイクロ波の出力は 1W である。誘起される電気分極  $P$  と  $I$  の間には

$$I = S \frac{d}{dt} P \quad (4.2.1)$$

の関係がある。ここで  $S$  は電極の面積である。これは  $P = Q/S$  であることから理解できる。

図 4.4 (b) の挿入図には  $I = dQ/dt$  の測定結果を時間積分し、 $S$  で割ることによって単位面積あたりの電荷である電気分極  $P$  を導出した結果である。 $P$  のスペクトルはローレンツ型に近い形状をしているが、これはスピン波共鳴時に電極側に電荷の偏りが起きて、電気分極を誘起したものが、非共鳴時に元の状態に戻るからである。 $I$  のスペクトルは  $P$  の微分形なので、正のピークが発現するときに電荷の偏りが電極付近で起こり、負のピークが発現するときに偏りが元に戻る。

マイクロ波吸収スペクトルを分極電流のスペクトルと比較すると、マイクロ波の吸収ピークが複数個観測された。そしてこのマイクロ波の吸収ピークが観測された周波数帯とほぼ同じ領域で、分極電流が観測されることが図 4.4 から理解できる。このことはスピン波共鳴に起因して分極電流が生成されることを示唆している。しかし、本研究では明確にスピン波のモードを区別することは不可能である。

図 4.5 に直流磁場を面内方向 ( $+H$ 、 $-H$ ) 及び面直方向に印加したときのマイクロ波共鳴スペクトル及び分極電流  $I = dQ/dt$  の測定結果を示した。図 4.5 (a) 及び (b) に直流磁場  $+H$ 、 $-H$  を印加したときのマイクロ波吸収スペクトルを表した。印加した直流磁場の大きさは 160 mT で、印加したマイクロ波の出力は 1W である。図中の  $\mathbf{M}$  は磁化の方向を表している。マイクロ波は 4 GHz から 8 GHz まで掃引した。そして、図 4.5 (d) 及び (e) に直流磁場  $+H$ 、 $-H$  を印加したときの分極電流  $I = dQ/dt$  のスペクトルを示した。図 4.5 (d)、(e) の挿入図には  $I = dQ/dt$  の測定結果を時間積分して導出した電気分極  $P = Q/S$  の結果を載せた。 $I$  の測定結果から、磁化  $\mathbf{M}$  を反転させると、 $I$  及び  $P$  の符号が逆転することがわかる。

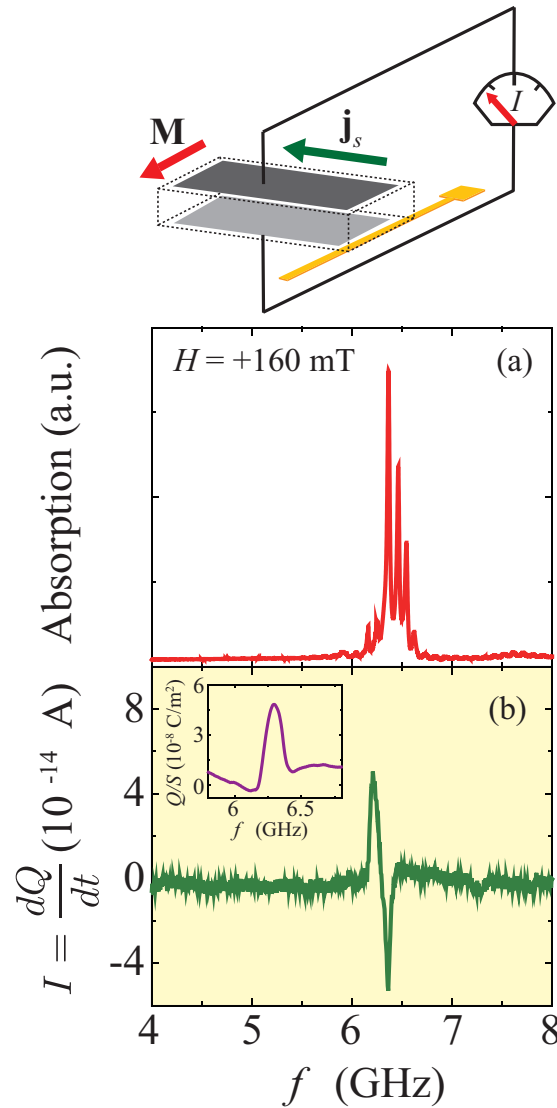


図 4.4 外部直流磁場  $H=160$  mT を印加したときのマイクロ波吸収スペクトル (a) 及び分極電流  $I = dQ/dt$  (b) の測定結果。このとき印加したマイクロ波の出力は 1W である。(b) の挿入図は  $I = dQ/dt$  の測定結果の時間積分を行い、 $S$  で割ることによって単位面積あたりの電荷である電気分極  $P$  を導出したときの測定結果。

図 4.5 (c)、(f) に直流磁場を試料面直方向に印加したときのマイクロ波共鳴スペクトル及び分極電流  $I = dQ/dt$  の測定結果を示した。印加した直流磁場の大きさは 245 mT で、印加したマイクロ波の出力は 1 W である。このとき、マイクロ波共鳴スペクトルに対応する分極電流  $I = dQ/dt$  の信号がほぼ表れていないことがわかる。また、図 4.5 (f) の挿入図にある電気分極の測定結果にも、共鳴時に信号がほとんど生じていない。これは磁化

が面直方向を向いており (図 4.3 の  $+z$  方向)、誘起された電気分極が面内方向に発生するためであると考えられる。このため、この測定の配置では電気分極による信号を検出することはできない。

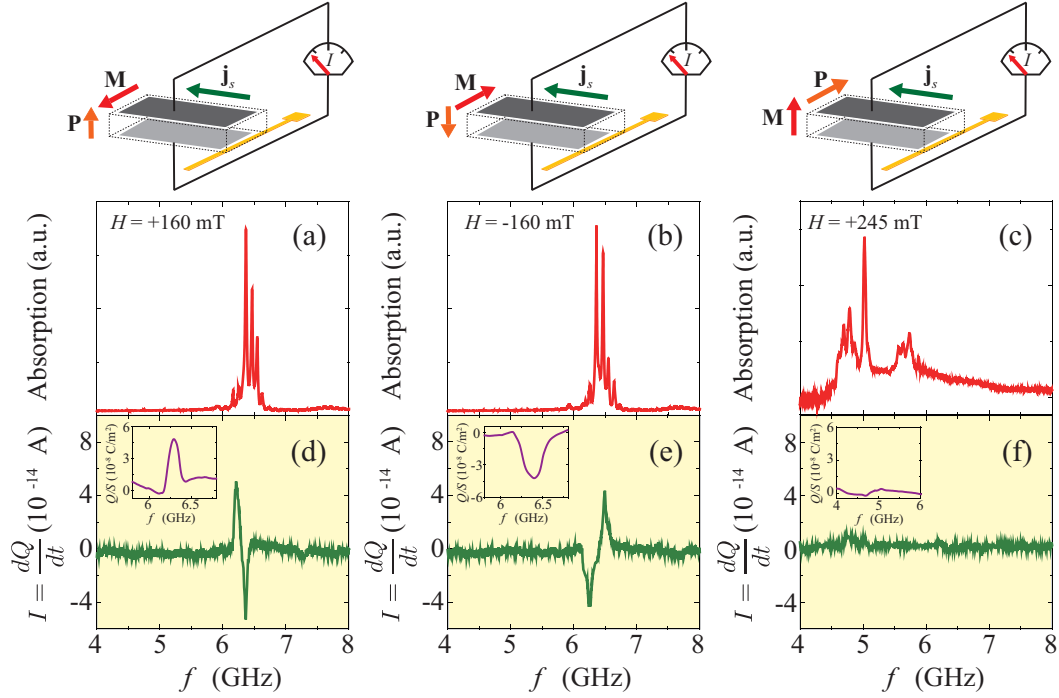


図 4.5 (a), (b) 直流磁場  $+H$ 、 $-H$  を試料面に対し面内に印加したときのマイクロ波吸収スペクトル。印加した直流磁場の大きさは 160 mT で、印加したマイクロ波の出力は 1W である。(c) 直流磁場  $+H$  を試料面に対し面直に印加したときのマイクロ波吸収スペクトル。印加した直流磁場の大きさは 245 mT で、印加したマイクロ波の出力は 1W である。(d), (e) 直流磁場  $+H$ 、 $-H$  を面内に印加したときの分極電流  $I = dQ/dt$  のスペクトル。印加した直流磁場の大きさは 160 mT で、印加したマイクロ波の出力は 1W である。挿入図は  $I = dQ/dt$  の測定結果を時間積分して導出した電気分極  $P = Q/S$  の結果である。(f) 直流磁場  $+H$  を面直に印加したときの分極電流  $I = dQ/dt$  のスペクトル。印加した直流磁場の大きさは 245 mT で、印加したマイクロ波の出力は 1W である。挿入図は  $I = dQ/dt$  の測定結果を時間積分して導出した電気分極  $P = Q/S$  の結果である。

### 4.3 スピン波スピン流誘起分極電流の直流磁場依存性の測定

同様に本研究で行なった測定がスピン波スピン流に起因するものであることを証明するために、外部直流磁場  $H$  を変化させたときのマイクロ波吸収スペクトル及び分極電流  $I = dQ/dt$  のスペクトルを図 4.6 (a) 及び (b) に示した。マイクロ波はこのとき、マイクロ波の周波数は 4 GHz から 8 GHz まで掃引した。このとき、印加したマイクロ波の出力は 1W である。マイクロ波の周波数の掃引速度は 0.056 GHz/sec である。図 4.6 (a) に着目すると、 $H$  を増大させることによって吸収スペクトルの中心が高周波側にシフトしていくことがわかる。また同様に  $I$  も高周波側にシフトしていることがわかる。測定されたマイクロ波吸収スペクトルがスピン励起に由来していることを確かめるために、マイクロ波吸収スペクトルが Kittel の式 ((3.2.1) 式) を満たすことを調べた [74]。そのために YIG の飽和磁化  $4\pi M_s$  を磁化測定から求め、 $4\pi M_s = 181 \text{ mT}$  を得た。図 4.7 は、図 4.6 (a) の結果を用いて強磁性共鳴周波数  $f$  の外部磁場強度  $H$  依存性を導出したものである。図中の曲線は Kittel の式 ((3.2.1) 式) を用いてフィッティングを行なった結果である。この結果、測定から得られたピーク周波数は Kittel の式から非常に良く再現されていることがわかった。各  $H$  におけるピーク周波数は、図 4.6 (a) の黒矢印で指し示している。これは本研究における測定は、YIG 平板におけるスピン励起に由来する信号であることを示している。

### 4.4 スピン波スピン流誘起分極電流の掃引時間依存性の測定

本研究で測定している電流信号は、電気分極  $P$  に起因する分極電流である。分極電流  $I = dQ/dt$  は電荷の時間微分で記述されているので、マイクロ波の周波数の掃引速度によって  $I$  の値は変化するはずである。分極電流はマイクロ波のピークで出現するので、掃引速度が速いほど、マイクロ波吸収ピークを通過する速度も速くなるので、 $dP/dt$  の値も増大するはずである。図 4.8 にマイクロ波掃引速度を変化させたときの分極電流  $I = dQ/dt$  のスペクトルを示した。この結果から、掃引速度が速いほど  $I$  の振幅が増大することがわかった。このとき、印加した直流磁場の強度は 160 mT で、印加したマイクロ波の出力は 1W である。

図 4.9 に掃引速度を変化させたときの分極電流  $I = dQ/dt$  の振幅を示した。 $I$  の振幅

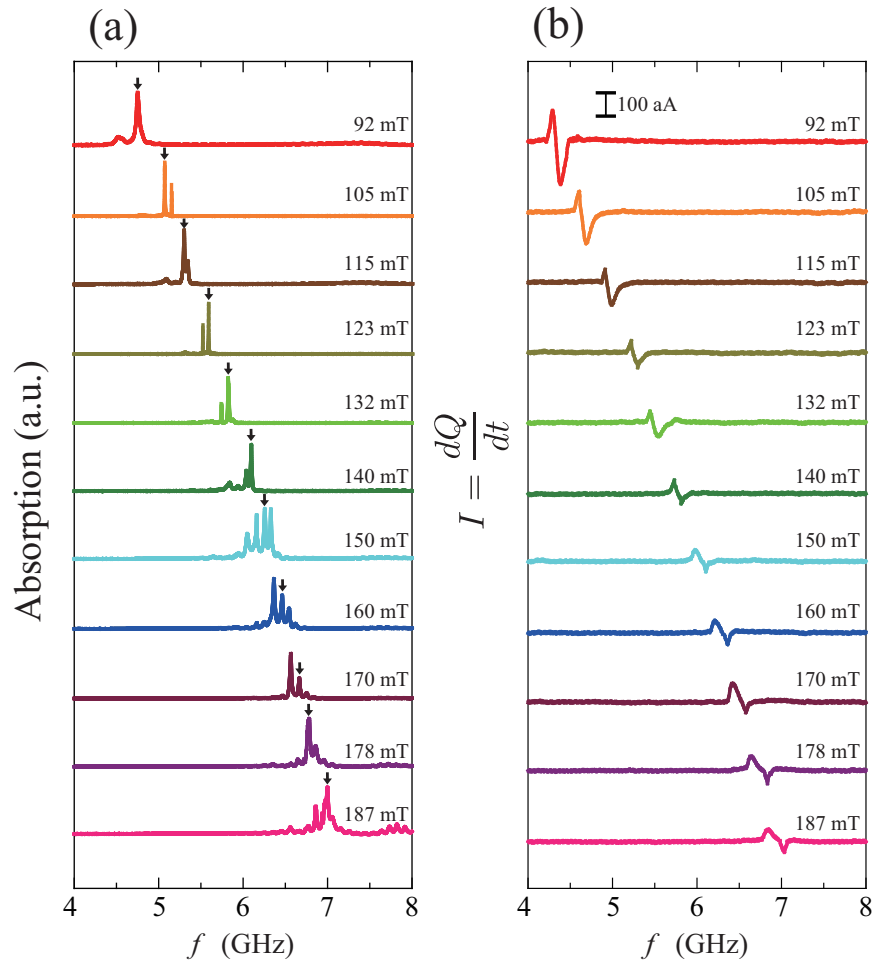


図 4.6 (a) 外部直流磁場  $H$  を変化させたときのマイクロ波吸収スペクトル。図中の黒矢印は、Kittel の式を満たすときのピーク周波数を表している。(b) 外部直流磁場  $H$  を変化させたときの分極電流  $I = dQ/dt$  のスペクトル。このとき、印加したマイクロ波の出力は 1W である。

は分極電流スペクトルのピーク間の値を採用している (挿入図にある  $I$  のピーク間の振幅を使っている)。この結果から、マイクロ波の掃引速度と  $I = dQ/dt$  の振幅の間に比例関係があることがわかった。

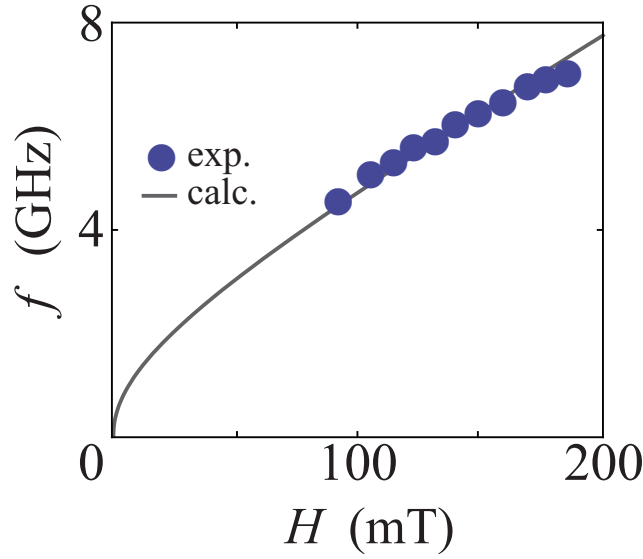


図 4.7 マイクロ波吸収スペクトルにおける強磁性共鳴周波数  $f$  の外部磁場強度  $H$  依存性。曲線は Kittel の式 ((3.2.1) 式) を用いてフィッティングを行なった。印加したマイクロ波の出力は 1W である。

#### 4.5 スピン波スピン流誘起分極電流及び電圧の $\text{SiO}_2$ 酸化膜電極を用いた測定

本研究のスピン波スピン流により電気分極が誘起される現象は、第3章で述べた逆スピンホール効果に起因するものではない。しかし本研究で観測された効果は、YIG から金属電極に注入されたスピン流に起因する逆スピンホール効果の寄与がないことを証明する必要がある。

そのため、まずは逆スピンホール効果による寄与が入らない状況を作り上げた。具体的には、今まで測定に用いていた金属電極 [Au/Ti] の内、Ti 中間層を  $\text{SiO}_2$  層に置き換えた。 $\text{SiO}_2$  はスピン流を通さない非磁性絶縁体である。 $\text{SiO}_2$  や  $\text{MgO}$  等の非磁性絶縁体を磁性層の上に挿入することによって、逆スピンホール効果による起電力が抑制されることが、複数の実験で観測されている [100–102]。しかし分極電流を測定する場合には、電極は電気分極によって誘起された電荷を検出する役割のみを担っている。また、 $\text{SiO}_2$  は絶縁体であるので、YIG に電気分極が生じた場合、同じように  $\text{SiO}_2$  層で多少電気分極が起こるはずである。よって本研究の測定系では、[Au/ $\text{SiO}_2$ ] 電極を用いた場合でも有限の分

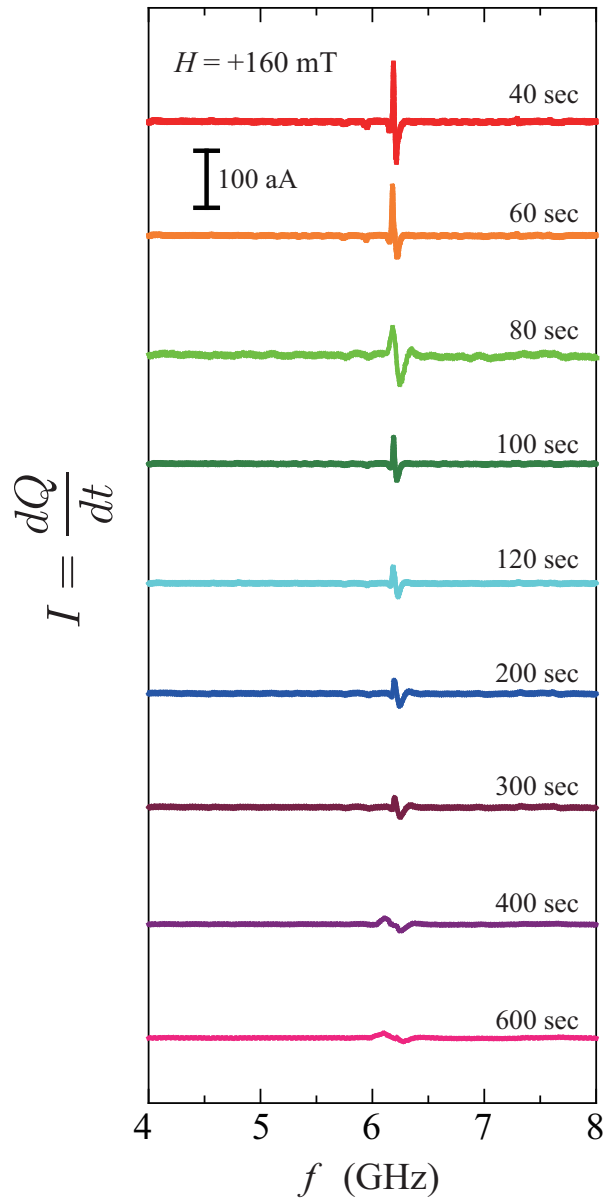


図 4.8 マイクロ波掃引速度を変化させたときの分極電流  $I = dQ/dt$  のスペクトル。このとき、印加した直流磁場の強度は 160 mT で、印加したマイクロ波の出力は 1W である。

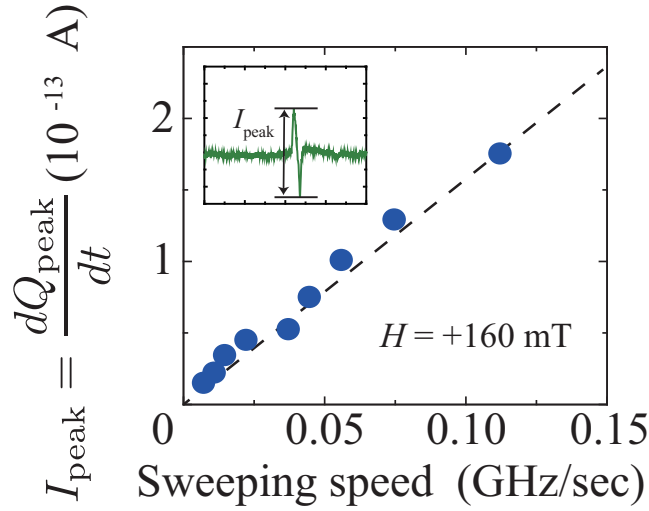


図 4.9 マイクロ波掃引速度を変化させたときの分極電流  $I = dQ/dt$  の振幅。振幅  $I$  の値は挿入図にあるように、分極電流スペクトルのピーク間の値を使っている。

極電流が観測可能なはずである。

図 4.10(a) 及び (b) に電極 (a): [Au (75 nm)/Ti (10 nm)] 及び (b): [Au (75 nm)/SiO<sub>2</sub> (30 nm)] を用いたときの分極電流  $I = dQ/dt$  のスペクトルのマイクロ波周波数依存性を示した。電極として全て金属で構成されている Au/Ti 及び金属/絶縁体である Au/SiO<sub>2</sub> の 2 種類を使用しているため、YIG のマイクロ波の吸収量に差が生じるはずである。そのため、2 つの分極電流を比較するためにマ、イクロ波の吸収量  $\Delta P$  で割った値  $I/\Delta P$  を採用した。印加した外部直流磁場は 160 mT で、印加したマイクロ波は 1W である。マイクロ波は 5 GHz から 7.5 GHz まで掃引した。その結果、黄色い矢印の示す場所にある様に両者の電極を使用した場合に、 $I$  のピークが発生することがわかった。すなわち、本研究で使用した測定系では、非磁性絶縁体層を使用しても分極電流が残存する。Au/Ti 電極を用いたときと比較して、Au/SiO<sub>2</sub> 電極を用いたときには  $I$  のピークの振幅が小さくなっているが、これは SiO<sub>2</sub> 層で電荷が一部トラップしたと考えられる。

さらに図 4.10(c) 及び (d) に、同じ測定系で電気分極が誘起された際の電圧  $V$  スペクトルのマイクロ波周波数依存性を測定した。YIG は絶縁体であるため、分極電流が生じていても、電圧信号は生じないはずである。実際に  $V$  の信号は Au/Ti 及び Au/SiO<sub>2</sub> 電極どちらを使用した場合にも生じなかった。この結果から、本研究で測定された信号は逆スピンホール効果に起因するものではないと判断できる。



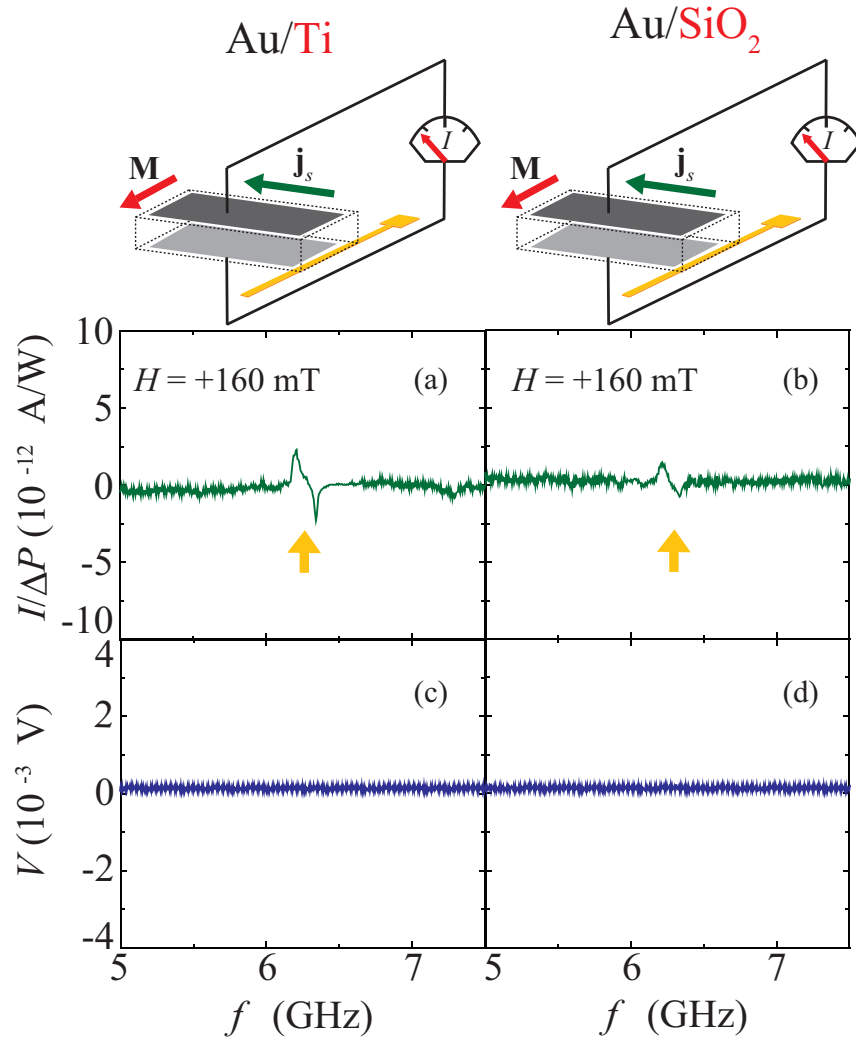


図 4.10 (a),(b), 分極電流のスペクトルのマイクロ波周波数依存性。このとき分極電流  $I$  をマイクロ波の吸収量  $\Delta P$  で割った値を縦軸に用いた。このとき、電極として Au/Ti (a) 及び Au/SiO<sub>2</sub> (b) を用いた。黄色い矢印の示す場所に (a),(b) 共にピークが現れている。(c),(d), 電圧  $V$  スペクトルのマイクロ波周波数依存性。このとき、電極として Au/Ti (c) 及び Au/SiO<sub>2</sub> (d) を用いた。印加した外部直流磁場は 160 mT で印加したマイクロ波は 1W である。マイクロ波は 5 GHz から 7.5 GHz まで掃引した。

## 4.6 Au 及び $\text{SiO}_2$ 電極を用いたときの逆スピンホール電圧及び電流の測定

$\text{SiO}_2$  層を電極に挟むことによって本研究で測定された信号が逆スピンホール効果による寄与がほとんどないことがわかったが、それを完全に証明するためにさらなる検証を行った。YIG から金属電極に注入されたスピン流の逆スピンホール効果による信号が存在しないもしくは無視できるほど小さいことを証明するために、分極電流を測定したときと同じ試料で、逆スピンホール効果による電圧及び電流を直接測定を試みた。逆スピンホール効果による電圧及び電流は (1.4.2) 式にあるように、スピン流の空間方向とスピン偏極方向に垂直な方向に発生する。図 4.11 は、電気分極を測定したときと同一の試料を使用したときの逆スピンホール効果による電圧及び電流を測定したときの測定系の模式図である。もし逆スピンホール効果による信号が存在すれば、図 4.11 の  $+z$  方向にスピン流が YIG から電極膜へと注入され、磁化  $\mathbf{M}$  が向いている  $+y$  方向がスピン偏極方向になっているので、 $x$  方向に逆スピンホール効果に起因する信号が検出されるはずである。

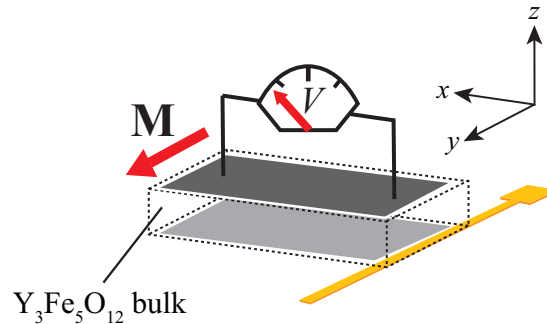


図 4.11 逆スピンホール効果による電圧及び電流を測定したときの測定系の模式図。測定試料は分極電流を測定したときのもので同一である。逆スピンホール効果による信号が存在すれば、 $+z$  方向にスピン流が注入され、 $+y$  方向がスピン偏極方向になっているので、 $x$  方向に逆スピンホール効果に起因する信号が表れるはずである。ここで、 $\mathbf{M}$  は磁化の方向である。

図 4.12 に逆スピンホール効果による電流  $I$  及び電圧  $V$  のマイクロ波周波数依存性の測定結果を載せた。この測定で逆スピンホール効果による信号を  $I$  として検出した理由としては、これまでに電気分極を電流信号として検出してきたので、分極電流との分離が容易

になるはずだからである。また、新たに  $V$  としても信号を検出したが、それは第3章の実験結果からも理解できるように、逆スピンホール効果による起電力は電圧信号を主に測定しているからである。これは逆スピンホール効果による信号は  $I$  よりも  $V$  で測定した方が容易だからである。印加した外部直流磁場は 160 mT で、印加したマイクロ波は 1W である。マイクロ波は 4 GHz から 8 GHz まで掃引した。

図 4.12 (a)、(b) に、Au/Ti 電極及び Au/SiO<sub>2</sub> 電極を用いたときの、逆スピンホール効果を測定する配置における  $I$  のマイクロ波周波数依存性を示した。このとき、どちらの電極でも信号は表れてはいないことがわかる。また、同様に図 4.12 (c)、(d) に、Au/Ti 電極及び Au/SiO<sub>2</sub> 電極を用いたときの、逆スピンホール効果を測定する配置における  $V$  のマイクロ波周波数依存性を示した。この場合もどちらの電極においても信号は検出されてはいないことがわかる。これらの結果から、逆スピンホール効果に由来する信号は、本研究で測定した試料においては無視できるほど小さいことを明らかにした。

## 4.7 スピン波スピン流誘起分極電流のマイクロ波の一樣励起時における測定

1.2 節でスピン波の定在波ではなく、進行波のみによってスピン角運動量が伝搬できることを記述した。そして、スピン波スピン流の進行波によって電気分極が励起されることを示してきたが、スピン波の進行波が電気分極生成に寄与しているのではなく、スピンの一様に歳差運動をしていることにより、電気分極が生成されている可能性がある。そこで、スピンの一様に励起された状態を作り出し、電気分極の測定を行い、スピン波による進行波を励起した条件との比較を行なった。試料全体にマイクロ波を導入することによって、スピン波の重ね合わせによる定在波励起が起こり、一様にスピン励起された状態を作り出すことができた。そのために分極電流を測定したときの幅 100  $\mu\text{m}$  のマイクロ波導波路よりも太い導波路を用いた。スピンの一様に励起を誘起するために、YIG の下に幅 3 mm のマイクロ波導波路を敷き、マイクロ波を導入した。このとき、試料の幅よりも導波路の幅の方が大きい。よって、一様に試料にマイクロ波を導入することができ、スピンの一様に歳差モードが支配的な状況を作り出すことができる。

図 4.13 に幅 100  $\mu\text{m}$  のマイクロ波導波路及び幅 3 mm のマイクロ波導波路を使用したときの分極電流  $I$  及び電圧  $V$  の測定結果を示した。それぞれの導波路を使用した測定条

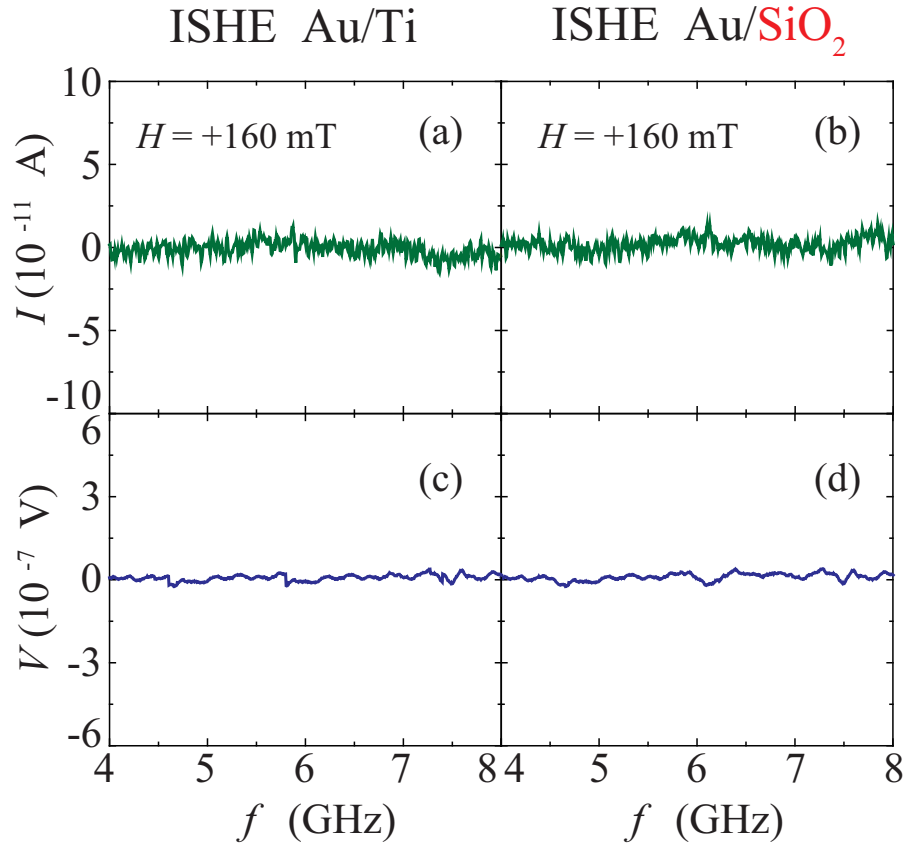


図 4.12 (a),(b), 逆スピンホール効果による電流  $I$  のマイクロ波周波数依存性。電極は分極電流を測定したときと同じ Au/Ti (a) 及び Au/SiO<sub>2</sub> (b) を用いた。(c), (d), 逆スピンホール効果による電圧  $V$  のマイクロ波周波数依存性。電極は分極電流を測定したときと同じ Au/Ti (c) 及び Au/SiO<sub>2</sub> (d) を用いた。

件で信号を比較するため、分極電流  $I$  は、マイクロ波の吸収量  $\Delta P$  で割った値を縦軸に使用した。また、電圧信号が発生していないことを検証するために、 $V$  の測定も行った。印加した外部直流磁場は 160 mT で、印加したマイクロ波は 1W である。図 4.13 の結果を参照すると、マイクロ波を試料に一部励起したときのみ分極電流が発生していることがわかる。すなわちスピン波を励起して、スピン波スピン流が生じたときのみ分極電流の信号が観測されることがわかった。そして、一様歳差励起が支配的な状況では、電気分極が発生しないことを明らかにした。

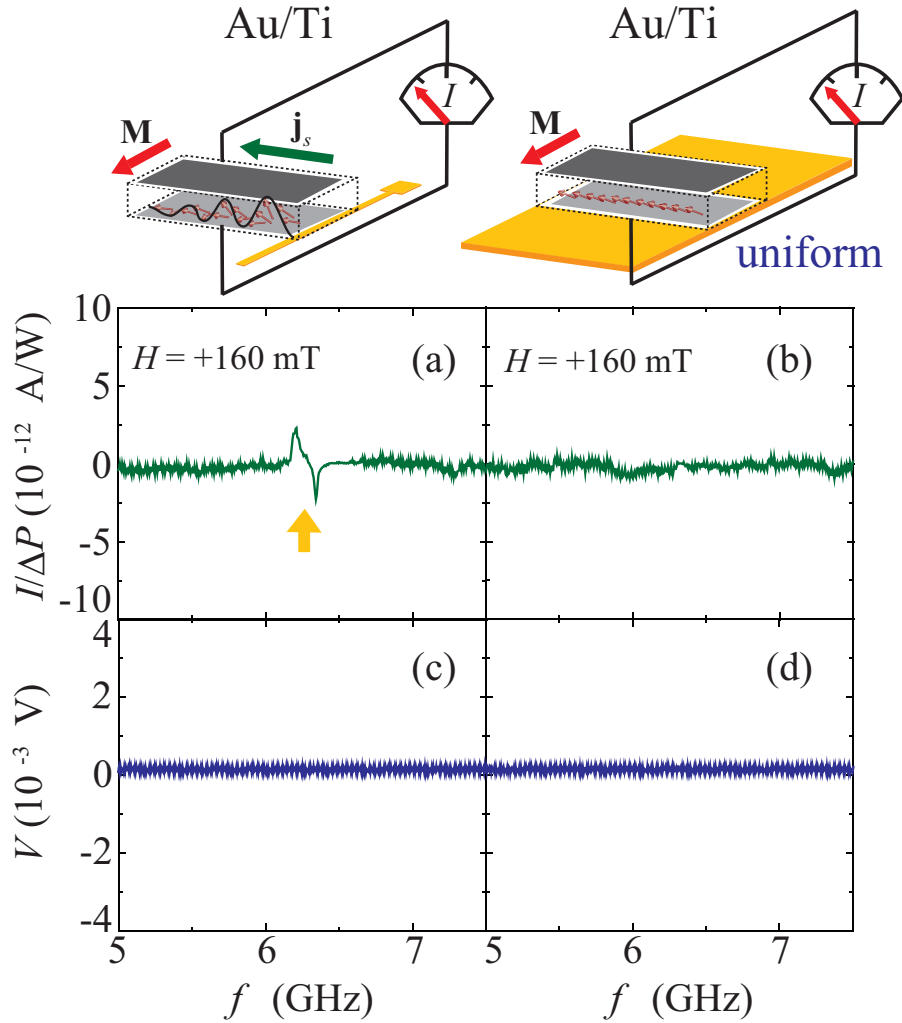


図 4.13 (a),(c), マイクロ波を試料に一部励起したときの分極電流  $I$  (a) 及び電圧  $V$  (c) のスペクトルのマイクロ波周波数依存性。このとき (a) では、分極電流  $I$  をマイクロ波の吸収量  $\Delta P$  で割った値を縦軸に用いた。(a) においては、黄色い矢印の示す場所にピークが現れている。(b),(d), マイクロ波を試料に一部励起したときの分極電流  $I$  (b) 及び電圧  $V$  (d) のスペクトルのマイクロ波周波数依存性。このとき (b) では、分極電流  $I$  をマイクロ波の吸収量  $\Delta P$  で割った値を縦軸に用いた。印加した外部直流磁場は 160 mT で、印加したマイクロ波は 1W である。

## 4.8 スピン波スピン流のスピン-電気変換係数の導出

マルチフェロイック物質では、(4.1.1) 式にある係数  $\eta$  を導出することができ、それによってスピン-電気変換現象の変換効率を求めることができる。本研究では、スピン波の波長やスピンの回転角等から  $\eta$  を求め、従来のマルチフェロイック物質との比較を行なった。このとき、スピン波の波長を計算するにあたって、1. 静磁スピン波、2. 交換スピン波の両者の場合を考慮した。静磁スピン波を考慮したときは、体積後進静磁波及び表面静磁波に関してのモードの計算を行い、交換スピン波を考慮したときは、2 マグノン過程に関しての計算を行なった。そして最終的にそれぞれのスピン波において、 $\eta$  の計算を行なった。

### 4.8.1 スピン波の傾角及び回転角の導出

$\eta$  を求めるためには、(4.1.1) 式のスピン波のねじれに起因するパラメーターである  $\mathbf{e}_{ij} \times (\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_j)$  の部分を求める必要がある。本研究における測定から、電気分極  $\mathbf{P}$  の大きさを求めることができたので、スピン波励起の場合の  $\mathbf{e}_{ij} \times (\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_j)$  の大きさがわかれば、 $\eta$  を導出できるはずである。

図 4.14 にスピン波スピン流  $\mathbf{j}_s$  及び各サイトにおけるスピン (赤矢印) の模式図を示した。スピン波スピン流は波長  $\lambda$  で  $+x$  方向に流れているとする。図 4.14 中の  $\gamma$  は  $z$  軸からのスピンの回転角度であり、 $\beta$  はスピンの傾角である。 $\alpha$  はスピンの回転角を表していて、 $i$  番目のサイトにあるスピン回転角  $\alpha_i$  は、 $\alpha_i = \frac{2\pi}{\lambda} ai + \alpha_0$  と記述することができる。ここで  $\alpha_0$  は、はじめのスピン波の回転角、 $a$  は格子定数を表している。

ここで隣接したサイト  $j$  及びサイト  $j+1$  において、 $\mathbf{e}_{j,j+1} \times (\mathbf{e}_j \times \mathbf{e}_{j+1})$  を  $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$  を用いて記述してみる。 $\mathbf{e}_j$ 、 $\mathbf{e}_{j+1}$  は、サイト  $j$  及びサイト  $j+1$  におけるスピンの方向の単位ベクトルである。また、 $\mathbf{e}_{j,j+1} = \mathbf{e}_{j+1} - \mathbf{e}_j = (1, 0, 0)$  はサイト  $j$  とサイト  $j+1$  を結ぶ単位ベクトルである。本研究の場合では  $\gamma = 0$  を仮定した。

図 4.14 から  $\mathbf{e}_j$  及び  $\mathbf{e}_{j+1}$  の各成分は、 $\mathbf{e}_j = (\sin \beta \cos \alpha_j, \sin \beta \sin \alpha_j, \cos \beta)$ 、 $\mathbf{e}_{j+1} = (\sin \beta \cos \alpha_{j+1}, \sin \beta \sin \alpha_{j+1}, \cos \beta)$  と記述できることがわかる。これらのパラメーターから、 $\mathbf{e}_{j,j+1} \times (\mathbf{e}_j \times \mathbf{e}_{j+1})$  を計算すると、 $\mathbf{e}_{j,j+1} \times (\mathbf{e}_j \times \mathbf{e}_{j+1}) = (0, -\sin^2 \beta \sin(\alpha_{j+1} - \alpha_j), \sin \beta \cos \beta \cos(\alpha_{j+1} - \alpha_j))$  となる。

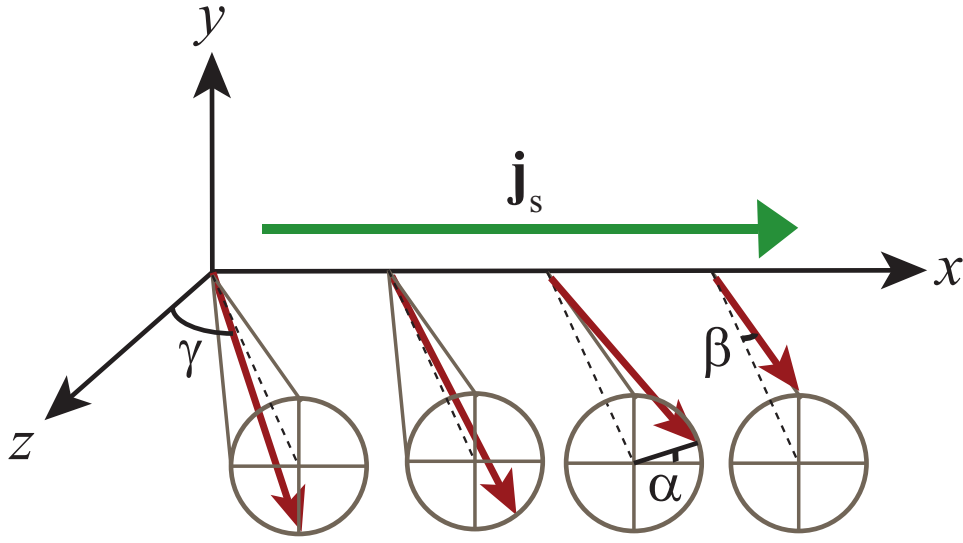


図 4.14 スピン波スピン流  $\mathbf{j}_s$  及び各スピンの配列の模式図スピン波スピン流は波長  $\lambda$  で  $+x$  方向に流れているとする。 $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$  はそれぞれスピンの回転角、傾角及び  $z$  軸からの回転角度を表している。

$\mathbf{e}_{j,j+1} \times (\mathbf{e}_j \times \mathbf{e}_{j+1})$  と生成される電気分極  $\mathbf{P}_j$  は比例関係にあるので、 $\mathbf{P}_j$  の  $y$  成分  $(P_j)_y$  も有限であることが理解できる。全てのサイトについて  $(P_j)_y$  を足し合わせると、生成される電気分極  $P$  は (4.1.1) 式を用いて、

$$P = \eta \sum_j (P_j)_y = \eta \sum_j \sin^2 \beta \sin(\alpha_{j+1} - \alpha_j) \quad (4.8.1)$$

と記述することができる [93]。

(4.8.1) 式では、スピンの傾角  $\beta$  は各サイトにおいて変化しないという仮定を置いた。しかし本研究では図 4.3 (a) にあるように、マイクロ波で試料の一部のみを励起しているので、導波路に近い部分のスピン波の振幅と試料の端部分のスピン波の振幅の大きさには差があり、スピン波が指数関数的に減衰する挙動を示す。必然的に  $\beta$  の大きさも指数関数的に減衰するはずである。図 4.15 にスピン波スピン流が減衰しているときの模式図を示した。

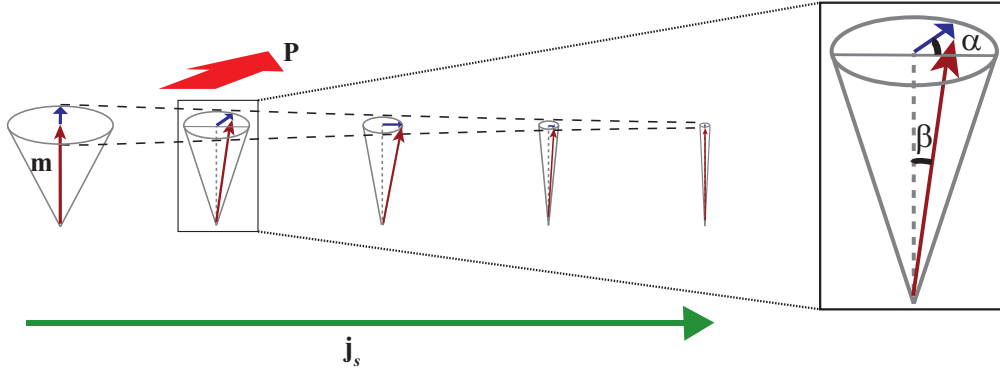


図 4.15 スピン波スピン流  $\mathbf{j}_s$  が減衰していく様子を表す模式図。 $\alpha$ 、 $\beta$  はそれぞれスピン  $\mathbf{m}$  の回転角と傾角を表している。 $\mathbf{P}$  はスピン波スピン流により誘起された電気分極を表している。

#### 4.8.2 静磁スピン波における分散曲線の波長及び減衰長の導出

スピン波スピン流の波長  $\lambda$  は、スピン波のモードによって異なる。前述したように、スピン波には交換スピン波及び静磁スピン波の二種類がある。まずは静磁スピン波のモードを用いて計算を行う。静磁スピン波は 1.2 節で述べたように、3 つのモードに分かれている。また、面内に磁場を印加したときの静磁スピン波のモードは、体積後進静磁波 (BVMSW) 及び表面静磁波 (MSSW) が存在する。そして、それぞれのスピン波が作り出す電気分極の大きさを計算した。まずは BVMSW 及び MSSW の分散関係を用いて  $\lambda$  を求めた。

BVMSW モードにおける厚さ  $d$  をもつ YIG サンプルにおけるスピン波の波数  $k$  と角周波数  $\omega_{\text{BVMSW}}$  の関係は、

$$\tan \left[ \frac{kd}{2\sqrt{-(1+\chi)}} - \frac{(n-1)\pi}{2} \right] = \sqrt{-(1+\chi)}, (n = 1, 2, 3 \dots) \quad (4.8.2)$$

となる。ただし、 $\chi = \omega_H \omega_M / (\omega_H^2 - \omega_{\text{BVMSW}}^2)$  で、 $\omega_H$  及び  $\omega_M$  は  $\omega_H = \gamma H$ 、 $\omega_M = 4\pi M_s \gamma$  である。 $H$ 、 $4\pi M_s$  は直流磁場及び飽和磁化である。ここで、 $n = 1$  の場合は、

$$\omega_{\text{BVMSW}} = \sqrt{\omega_H \left( \omega_H + \omega_M \frac{1 - \exp(-kd)}{kd} \right)} \quad (4.8.3)$$



のように近似して表すことができる [98, 99, 103]。この分散関係は無限平面を仮定した場合の近似であるので、本研究のように YIG 平板を用いた場合には、粗い近似となる。

また、MSSW モードにおける厚さ  $d$  をもつ YIG サンプルにおけるスピン波の波数  $k$  と角周波数  $\omega_{\text{MSSW}}$  の関係は、

$$\omega_{\text{MSSW}} = \sqrt{\omega_{\text{H}}(\omega_{\text{H}} + \omega_{\text{M}}) + \frac{\omega_{\text{M}}^2}{4}(1 - e^{-2kd})} \quad (4.8.4)$$

のように近似して表すことができる。

本研究では図 4.4 (a) のデータを用いて  $k$  を求めた。印加した直流磁場は  $H = 160$  mT であり、強磁性共鳴の共鳴周波数から BVMSW のスピン波共鳴の共鳴周波数は 6.11 GHz から 6.36 GHz の範囲にあり、MSSW のスピン波共鳴の共鳴周波数は 6.36 GHz から 6.56 GHz の範囲にあると求まった。(4.8.3) 式及び (4.8.4) 式から、BVMSW モード及び MSSW モードにおけるスピン波の波長  $\lambda_{\text{BVMSW}}$ 、 $\lambda_{\text{MSSW}}$  は、BVMSW のときはスピン波共鳴周波数が 6.11 GHz のときは  $\lambda_{\text{BVMSW}} = 2.4 \times 10^{-3}$  m、6.36 GHz のときは  $\lambda_{\text{BVMSW}} = 1.4 \times 10^{-3}$  m、MSSW のときはスピン波共鳴周波数が 6.36 GHz のときは  $\lambda_{\text{MSSW}} = 2.2 \times 10^{-3}$  m、6.56 GHz のときは  $\lambda_{\text{MSSW}} = 1.4 \times 10^{-3}$  m となった。

BVMSW モード及び MSSW モードにおける波長を求めることができたが、試料中に流れるスピン波がどれくらいの長さで減衰するかを見積もることができなければ、電気分極へと変換される成分がどのくらいあるかを求めることができない。そこで、BVMSW モード及び MSSW モードのスピン波の群速度  $v_g$  及び緩和時間  $T_k$  を求めることができれば、減衰長  $\xi = v_g T_k$  を導出することができる。

まず、本研究における BVMSW モードにおけるスピン波が作り出す群速度  $v_g$  を求める。 $v_g$  は

$$\frac{1}{v_g} = \frac{\chi\kappa}{\omega_{\text{M}}d} \left[ \frac{2}{\chi} + \frac{kd}{1+\chi} \right] \quad (4.8.5)$$

となる。ここで  $\kappa$  は、 $\kappa = \omega_{\text{BVMSW}}\omega_{\text{M}}/(\omega_{\text{H}}^2 - \omega_{\text{BVMSW}}^2)$  である。スピン波共鳴の共鳴周波数が 6.11 GHz のときは  $v_g = 6.3 \times 10^6$  m/s となった。

また、MSSW モードにおけるスピン波が作り出す群速度  $v_g$  は、

$$\frac{1}{v_g} = \frac{4\omega_{\text{MSSW}}}{\omega_{\text{M}}^2 d} e^{2kd} \quad (4.8.6)$$

となる。スピン波共鳴の共鳴周波数が 6.56 GHz のときは  $v_g = 5.9 \times 10^6$  m/s となった。

さらに、BVMSW モードと MSSW モードのスピン波における伝搬損失を求める [98,104]。スピン波の緩和時間を考察する際には、それに加えて印加磁場、マイクロ波周波数の寄与が入る。BVMSW モードのスピン波の緩和時間  $T_k$  は、

$$\frac{1}{T_k} = \alpha \left( \frac{\omega_H^2 + \omega_{\text{BVMSW}}^2}{2\omega_H} \right) \quad (4.8.7)$$

となる。ただし、 $\alpha$  は Gilbert 緩和定数である。スピン波共鳴の共鳴周波数が 6.11 GHz のときは  $2.6 \times 10^{-7} \text{ s}$  となった。本研究では、 $\alpha$  の値は文献値である  $\alpha = 1 \times 10^{-4}$  を用いた [61,105]。

同じように、MSSW モードのスピン波の緩和時間  $T_k$  は、

$$\frac{1}{T_k} = \alpha \left( \omega_H + \frac{\omega_M}{2} \right) \quad (4.8.8)$$

となる。スピン波共鳴の共鳴周波数が 6.56 GHz のときは  $2.3 \times 10^{-7} \text{ s}$  となった。MSSW モードの場合は、試料の表面付近のみでスピン波が支配的に伝搬している。そのため、スピン波の振幅が試料内部で指数関数的に減衰することを踏まえ、 $\eta$  の計算を行なった。

### 4.8.3 交換スピン波における波長及び減衰長の導出

1.2 節でも述べたが、マグノンの緩和・分裂過程である 2 マグノン過程や 3 マグノン過程を利用すれば、交換スピン波を生成することができる。一様歳差運動 ( $\mathbf{k} = 0$ ) からマグノンに遷移する過程 ( $\mathbf{k} \neq 0$ ) として挙げられる 2 マグノン過程と 3 マグノン過程についての説明を行う。図 4.16 に 2 マグノン過程、3 マグノン過程の模式図を示した。2 マグノン過程 [図 4.16(a)] は、一様歳差運動 ( $\mathbf{k} = 0$ ) からエネルギー  $\hbar\omega_0$  を保存しながら、マグノン  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  を作り出す散乱プロセスである。2 マグノン過程は、不純物や格子欠陥等、系の並進対称性が崩れている状況で発現しやすい。

3 マグノン過程 [図 4.16(b)] は、一様歳差運動 ( $\mathbf{k} = 0$ ) からエネルギー  $\hbar\omega_0$  及び運動量 ( $\mathbf{k} = 0$ ) を保存しながら、二つのマグノン  $\mathbf{k} = +\mathbf{k}'$  及び  $\mathbf{k} = -\mathbf{k}'$  を生成する過程である。このとき、エネルギーを保存するため二つのマグノンのエネルギーは  $\hbar\omega_0/2$  となる。一様歳差運動の 3 マグノン過程における散乱時のスピンポンピングが過去に報告されている [61]。

3 マグノン過程はエネルギー  $\hbar\omega_0/2$  で運動量  $\mathbf{k} = \pm\mathbf{k}'$  の二つのマグノンに分裂する散乱過程であるが、これが生じるためにはマグノンバンド内にエネルギー  $\hbar\omega_0/2$  を持った

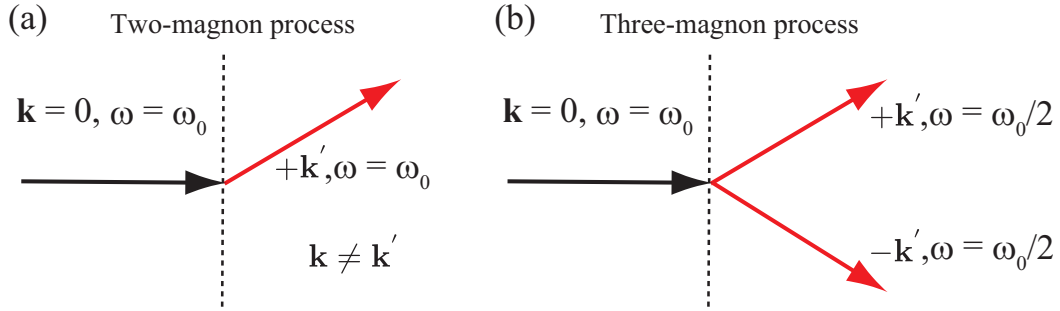


図 4.16 マグノンの緩和・分裂過程。(a) 2 マグノン過程。波数  $\mathbf{k}$  は保存されないが、エネルギー  $\hbar\omega$  は保存される過程である。(b) 3 マグノン過程。 $\mathbf{k}$  及び  $\hbar\omega$  が保存される過程である。

マグノンが存在する必要がある [図 4.17 の青矢印の遷移過程]。すなわちマグノンバンドの最低エネルギーより散乱過程のエネルギーが大きい必要がある ( $\hbar\omega_0/2 > \hbar\omega_{\min}$ )。ここで、 $\omega_0 = \gamma\sqrt{H(H + 4\pi M_s)}$ 、 $\omega_{\min} \approx \gamma H$  である。このことから、共鳴周波数  $f_{\text{FMR}}$  が  $f_{\text{FMR}} < \frac{2}{3}\gamma(4\pi M_s)$  を満たす条件で、3 マグノン過程が生じる。ここで  $\gamma = 1.76 \times 10^{11} \text{ T}^{-1}\text{s}^{-1}$  を用いた。本研究では、3 マグノン過程が生じるためのマイクロ波周波数は 3.3 GHz となり、これ以上の周波数では 3 マグノン過程は起こりえない。本研究の場合はそれ以上の周波数のマイクロ波を用いており、3 マグノン過程における寄与はの場合考えにくい。

前述の議論から、2 マグノンの遷移過程 [図 4.17 の赤矢印の遷移過程] の寄与がこの場合考えられる。一様歳差運動を行っている状態から遷移確率  $A$  でマグノン励起が行われる。2 マグノン過程は YIG 上で、結晶表面の欠陥等を利用して研究が行われてきた [97]。図 4.17 において、 $k$  が大きくなるにつれ、スピン波の分散関係が  $Da^2k^2$  に比例するようになる (ここで、 $D$ 、 $a$  はそれぞれスピン波スティフネス定数及び格子間隔)。図 4.17 で、 $\omega_{\min}$  に対応する  $k$  よりも大きい  $k$  では、 $Da^2k^2$  の寄与が無視できなくなる。これより  $k$  が大きくなる範囲では、 $\omega$  が  $k^2$  に比例すると仮定すると、本研究において印加磁場が  $H = 160 \text{ mT}$  の場合、2 マグノン過程による遷移で、 $k = 1.2 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$  のマグノンが生成されると計算できる。また  $D$  は、 $D = 2.0 \times 10^{-20} \text{ J}$  と導出できた。緩和時間  $T_k$  は、一様歳差運動における表式  $1/T_k = \omega\alpha$  を用いて近似的に求めた。群速度  $v_g$  は分散関係が  $\omega \propto k^2$  であることから、 $v_g = 2Da^2k$  として求めた。

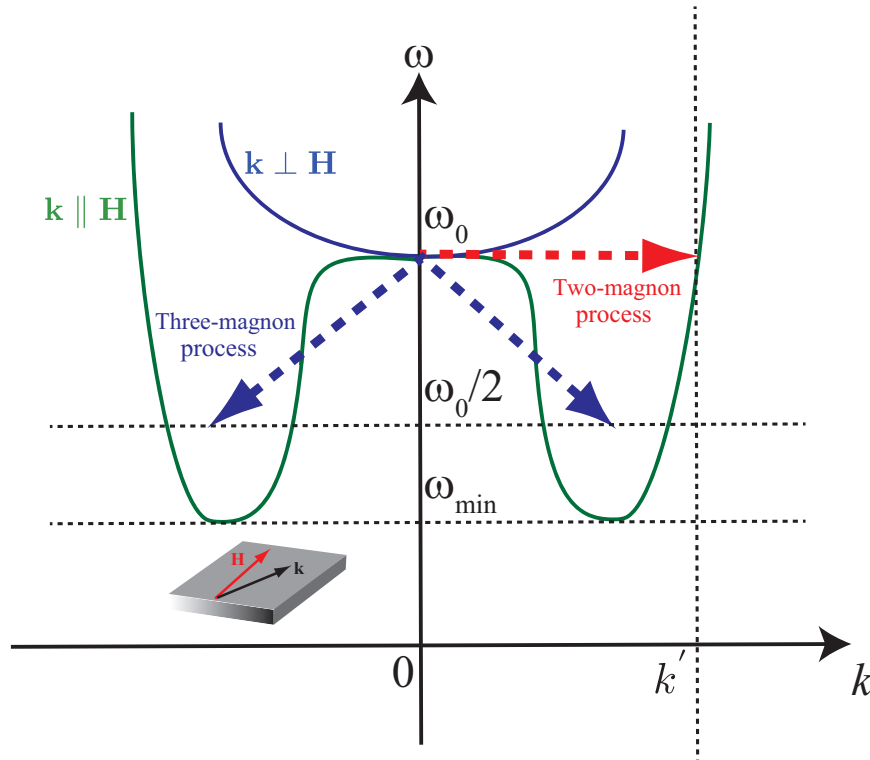


図 4.17 スピン波の分散関係の模式図。赤矢印が 2 マグノンの波数  $k'$  への遷移過程、青矢印が 3 マグノンの遷移過程を表している。スピン波の運動量方向  $\mathbf{k}$  と印加磁場方向  $\mathbf{H}$  が平行な場合と垂直な場合について述べる。

#### 4.8.4 本研究におけるスピン-電気変換係数の導出

スピン波の傾角  $\beta$  は、スピン波が励起された地点から離れた地点へと伝搬される程減衰することが理解できる。減衰特性を計算するために、まずは YIG の端で励起されたスピンの傾角  $\beta$  を求める。このとき  $\beta$  はスピンが一様歳差運動を行っている際の表式を用いる。図 4.14 に着目すると、スピンの  $y$  成分を  $m_y$  とおくと、 $\beta = \sin^{-1}(m_y/M_s)$  と定義できる。ここで、 $M_s$  は飽和磁化である。すなわち  $m_y$  を求めることができれば、 $\beta$  も導出することができる。

$m_y$  は強磁性共鳴を用いた測定において、面内方向に磁場を印加した条件で、第 3 章で

求めた (3.8.6) 式から導出することができる。その結果  $\beta$  は、

$$\beta = \sin^{-1} \left( \frac{\gamma h}{4\pi\alpha\sqrt{(4\pi M_s)^2\gamma^2 + 4\omega^2}} \right) \quad (4.8.9)$$

と求められる。ここで、 $h$  はマイクロ波の磁場成分の振幅、 $\omega$  はマイクロ波の角周波数である。 $h$  はマイクロ波の吸収量から求めることができるが、本研究では導波路に印加されたマイクロ波電流が誘起するマイクロ波磁場の大きさから  $h$  を求めた。これはアンペールの法則を用いて導波路から試料に注入される  $h$  を計算した。(4.8.9) 式の他のパラメータは実験もしくは文献値から見積もった。 $\alpha$  及び  $h$  は、 $\alpha = 1 \times 10^{-4}$ 、 $h = 7 \times 10^{-6}$  T を使用した。

YIG の端で励起されたスピン波は、励起地点にあるスピンの傾角  $\beta$  も指数関数的に減衰していく。励起地点から  $n_j$  個離れたサイトにあるスピンの傾角  $\beta_j$  は、格子間隔  $a$  及びスピン波の減衰長  $\xi$  を用いて、

$$\beta_j = \beta \exp \left( -\frac{a \cdot n_j}{\xi} \right) \quad (4.8.10)$$

と表せる。

ここでは (4.8.1) 式から、全ての原子における  $\sin^2 \beta_j$  の和である  $\sum_j \sin^2 \beta_j$  を求める必要がある。(4.8.1) 式の  $\sin(\alpha_{j+1} - \alpha_j)$  にあたる部分はスピン波の波長に反比例する。 $\sin(\alpha_{j+1} - \alpha_j)$  は、

$$\sin(\alpha_{j+1} - \alpha_j) = \frac{2\pi a}{\lambda} \quad (4.8.11)$$

と求めることができる。 $a$  は系の格子間隔である。

これらの結果から、(4.8.1) 式の  $\sum_j \sin^2 \beta \sin(\alpha_{j+1} - \alpha_j)$  の部分を算出することができる。電気分極  $P$  は実験結果から、印加磁場が  $H = 160$  mT の場合、 $P = 3.0 \times 10^{-8}$  C/m<sup>2</sup> となる。よって、本研究で算出された  $\eta$  を求めると、BVMSW モードのスピン波 (スピン波共鳴周波数: 6.11 GHz) を用いた場合、 $\eta \sim 3 \times 10^{-8}$  C/m<sup>2</sup> となった。また、MSSW モードのスピン波 (スピン波共鳴周波数: 6.56 GHz) を用いた場合、 $\eta \sim 5 \times 10^{-6}$  C/m<sup>2</sup> となった。これらの結果はマルチフェロイックスの一つである TbMnO<sub>3</sub> の  $\eta$  の値  $\eta \sim 1 \times 10^{-3}$  C/m<sup>2</sup> と比較しても十分に小さいことがわかる [96]。その原因として、YIG のスピン軌道相互作用が小さいことと、スピン波がおりなすスピン間の角度が小さいことが予想される。

また、交換スピン波を用いて2マグノン散乱を利用した場合には、 $\eta$ と2マグノンへの遷移確率 $A$ の積 $\eta A$ を導出することができる。印加磁場が $H = 160 \text{ mT}$ の場合、 $\eta A \sim 1 \times 10^{-10} \text{ C/m}^2$ となった(共鳴周波数: 6.36 GHz)。

## 4.9 本章のまとめ

本章で得られた結論は以下の3点に集約される。

- $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  平板において、スピン角運動量を伝搬するスピン波スピン流を利用することにより、スピン流から電気分極へと直接変換するスピン-電気変換現象を初めて観測した。
- 本研究で用いたスピン波スピン流が誘起する電気分極発現現象は、 $\text{SiO}_2$  層を電極として挟んでも検出されたことや、一様なスピン歳差運動を励起した場合には、検出されなかったことから、逆スピンホール効果のような既存の効果では説明できず、スピン波スピン流に由来する現象であることを導いた。
- 本研究におけるスピン波スピン流を利用した電気分極発現現象におけるスピン-電気変換係数を、磁気秩序が誘起する強磁性強誘電体の発現原理であるジャロシンスキー・守谷相互作用の逆効果を利用したモデルを用いて導出した。このときスピン-電気変換係数を、静磁スピン波及び交換スピン波それぞれの場合において導出した。

## 第 5 章

# 結論

本博士論文では、強磁性金属/常磁性金属界面及びフェリ磁性絶縁体におけるスピン流-電流相互作用を系統的に解明することを目的とし、2つの実験に関わる研究成果を報告した。一つは強磁性金属/Pt 複合膜において、スピンプンピングによるスピン流生成を及び逆スピホール効果によるスピン流検出を行い、生成されるスピン流密度の物質パラメーター依存性を調べた。これにより、スピンプンピングにより誘起されるスピン流の定量法を確立した。もう一つは  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  平板における、スピン波スピン流を利用したスピン-電気変換現象に関する研究報告である。

本研究により得られた研究成果は以下の点に集約される。

1. 強磁性金属/Pt 複合膜において、スピンプンピングにより生成されるスピン流密度が強磁性体の電子構造の詳細によるのではなく、強磁性共鳴により測定可能な強磁性体の物質パラメーターによりスケールリングされることを示す結果が得られた。
2. フェリ磁性絶縁体である ( $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ : YIG) 平板を用いて、YIG 中のスピン波スピン流が誘起する電気分極を検出した。この効果は分極電流を検出する電極として  $\text{SiO}_2$  を挿入しても観測されることから、電極にスピン流が注入されたことによる逆スピホール効果では説明できないことを明らかにした。また、一様に試料をマイクロ波で励起しても、分極電流による信号は検出されないことから、スピン波に起因する現象であることを示した。これらの結果はスピン波スピン流による新たなスピン-電気変換現象が観測されたことを意味する。
3. スピン波スピン流を利用した電気分極発現現象は、磁気秩序が誘起するマルチフェ

ロイックスの発現原理であるジャロシンスキー・守谷相互作用の逆効果を利用したモデルで説明できることを明らかにした。そして、マルチフェロイックスの分野で用いられているスピン-電気変換現象に係わる係数を求めた。このとき、スピン波の波長やスピン間の回転角等からスピン-電気変換係数を求め、従来のマルチフェロイック物質との比較を行なった。このとき、スピン波の波長を計算するにあたって、静磁スピン波及び交換スピン波の両者の場合を考慮した。

本論文によって明らかになった金属や絶縁体を用いたスピン流-電流変換現象の研究は、スピントロニクス分野でスピン流技術や概念を理解するための指針になるものとして期待される。



# 謝辞

本研究の遂行にあたり、大変多くの方にご指導、ご協力して頂きました。心より感謝申し上げます。

指導教官である東北大学原子分子材料科学高等研究機構教授 齊藤英治先生には本研究の遂行にあたり、終始懇切なご指導を賜りました。研究関連では、研究に対する取り組みや物理学の奥深さについてご教示頂きました。研究以外でも、研究者として活躍するために必要なプレゼンテーションスキル、論文執筆手法など様々なことをご指導頂きました。深く感謝致します。今後、研究室で得られたスキルを少しでも社会に還元できるよう精進したいと思います。

元金属材料研究所 齊藤研究室准教授 藤川安仁先生 (現弘前大学理工学部物理科学科教授) には本研究の遂行にあたり終始懇切なるご指導を賜りました。研究に関する貴重なアドバイスを頂いただけでなく、学位論文や学術論文の添削も細かい点までチェックして頂きました。心より感謝申し上げます。

東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻教授 有馬孝尚先生、助教 阿部伸行先生には、分極電流の測定系の構築及び測定にあたり、ご支援、ご協力を頂きました。特に阿部伸行先生には私の質問に懇切丁寧に回答して頂きました。深く感謝申し上げます。

慶應義塾大学物理情報工学科教授 伊藤公平先生、的場正憲先生には、研究面だけでなく生活面で多大なサポートを賜りました。また、電子ビーム蒸着装置や電子スピン共鳴装置の使用を快く認めて頂きました。心より感謝申し上げます。

研究生活において齊藤研究室のスタッフや学生の皆様にも心より感謝申し上げます。安東秀先生 (現理化学研究所 Research Scientist) には実験装置の使い方やメンテナンスを行うにあたって大変お世話になりました。安藤和也先生 (現慶應義塾大学理工学部物理情報工学科専任講師) には私が齊藤研究室に入ってから研究面や生活面に関して一から御指導頂き、大変お世話になりました。針井一哉博士 (現日本原子力研究開発機構研究員) に

は、私が齊藤研究室に入ってから実験手法やデータの解釈について様々な御助言を頂きました。内田健一先生には、研究面のみならず日常生活において大変お世話になりました。井口亮先生には装置の使い方やデータの解釈等、私の研究に関して多大な御助言を頂きました。塩見雄毅先生には、装置の使い方や理論面で様々な御助言を頂きました。新関智彦先生、邱志勇先生には、成膜装置のメンテナンスの面で大変お世話になりました。Dazhi Hou 博士、捧耕平さん、中山裕康博士、梶原瑛祐博士、岡本尚也さん、菊池大介さん、岩下貴保さん、浅田泰輔さん、太田岳さん、北村有司さん、堀元子さん、安藤実穂さん (旧姓: 森川)、S. M. Haidar さん、野中挙海さん、高橋遼さん、大沼悠一さん、田代隆治さん、山口和也さん、Huang Tianyu さん、大谷隆史さん、高村恭平さん、廣部大地さん、吉川貴史さん、半田優さん、村山渉さん、Ahmet Yagmur さん、大門俊介さん、Jana Lustikova さん、濱野裕三さんとは共に研究できたことを嬉しく思います。皆様には様々な場面で助けて頂きました。心より感謝申し上げます。

齊藤研究室秘書の齊藤由美さん、佐々木一恵さん、波入久美さん、佐藤ゆみ子さんには大変お世話になりました。深く感謝申し上げます。

東北大学金属材料研究所教授 野尻 浩之先生、東北大学金属材料研究所教授 Gerrit E. W. Bauer 先生、東北大学金属材料研究所教授 塚崎敦先生、東北大学金属材料研究所准教授 野村健太郎先生、東北大学大学院理学研究科物理学専攻教授 石原純夫先生には、ご多忙の折にも関わらず、論文審査委員を快く引き受けて下さいました。心より感謝申し上げます。

最後に家族や友人をはじめ、本研究を支えて下さった、全ての方々に深く感謝申し上げます。

2013 年 12 月 吉野達郎

## 参考文献

- [1] *Concepts in Spin Electronics*, edited by S. Maekawa (Oxford University Press, Oxford, 2006).
- [2] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, *Science* **294**, 1488 (2001).
- [3] M. N. Baibih, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [4] G. Binash, P. Grünberg, F. Saurenbah, and W. Zinn, *Phys. Rev. B* **39**, 4828 (1989).
- [5] *Spin Current*, edited by S. Maekawa, S. O. Valenzuela, E. Saitoh, and T. Kimura (Oxford University Press, Oxford, 2012).
- [6] E. B. Myers, D. C. Ralph, J. A. Katine, R. N. Louie, and R. A. Buhrman, *Science* **285**, 867 (1999).
- [7] J. A. Katine, F. J. Albert, R. A. Buhrman, E. B. Myers, and D. C. Ralph, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3149 (2000).
- [8] A. Yamaguchi, T. Ono, S. Nasu, K. Miyake, K. Mibu, and T. Shinjo, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 077205 (2004).
- [9] J. Bass, and W. P. Pratt, Jr., *J. Phys.: Condens. Matter.* **19**, 183201 (2007).
- [10] J. C. Slonczewski, *J. Magn. Magn. Mater.* **159**, L1 (1996).
- [11] T. Valet and A. Fert, *Phys. Rev. B* **48**, 7099 (1993).
- [12] A. A. Serga, A. V. Chumak and B. Hillebrands, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43**, 264002 (2010).
- [13] N. Nagaosa, *J. Phys. Soc. Jpn* **77**, 031010 (2008).
- [14] P. Bruno, and V. K. Dugaev, *Phys. Rev. B* **72**, 241302 (2005).

- [15] Z. Wang, Y. Sun, M. Wu, V. Tiberkevich, and A. Slavin, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 146602 (2011).
- [16] T. An, V. I. Vasyuchka, K. Uchida, A. V. Chumak, K. Yamaguchi, K. Harii, J. Ohe, M. B. Jungfleisch, Y. Kajiwara, H. Adachi, B. Hillebrands, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nature Mater.* **12**, 549 (2013).
- [17] L. Berger, *Phys. Rev. B* **54**, 9353 (1996).
- [18] A. Brataas, Y. V. Nazarov, and G. E. W. Bauer, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2481 (2000).
- [19] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, and G. E. W. Bauer, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 117601 (2002).
- [20] M. I. Dyakonov and V. I. Perel, *Phys. Lett.* **35A**, 459 (1971).
- [21] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Science* **306**, 1910 (2004).
- [22] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047204 (2005).
- [23] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 182509 (2006).
- [24] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, *Nature* **442**, 176 (2006).
- [25] P. A. M. Dirac, *proc. R. Soc. London, Ser. A* **133**, 60 (1931).
- [26] 中山正敏, 物質の電磁気学 (岩波基礎物理シリーズ (4)) (岩波書店, 1996).
- [27] H. A. Kramers, *Physica* **1**, 182 (1934).
- [28] P. W. Anderson, *Phys. Rev.* **79**, 350 (1950).
- [29] P. W. Anderson, *Phys. Rev.* **115**, 2 (1959).
- [30] 望月和子, 鈴木直, 固体の電子状態と磁性 (大学教育出版, 2003).
- [31] I. Dzyaloshinsky, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 241 (1958).
- [32] T. Moriya, *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
- [33] 近角聡信, 太田恵造, 安達健五, 津屋昇, 石川義和, 磁性体ハンドブック (朝倉書店, 2006).
- [34] S. H. Yuan, M. P. Horvath, P. E. Wigen, and P. DeGasperi, *J. Appl. Phys.* **61**, 3552 (1987).

- [35] M. A. Gilleo, and S. Geller, Phys. Rev. **110**, 73 (1958).
- [36] 日本化学会編, 実験化学講座 8 NMR・ESR, (丸善株式会社, 2006).
- [37] 太田恵造, 磁気工学の基礎 II, (共立全書, 1973).
- [38] M. Hosomi, H. Yamagishi, T. Yamamoto, K. Bessho, Y. Higo, K. Yamane, H. Yamada, M. Shoji, H. Hachino, C. Fukumoto, H. Nagao, and H. Kano, Tech.Dig. - Int. Electron Devices Meet. **2005**, 459.
- [39] S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki, Phys. Rev. B **66**, 104413 (2002).
- [40] B. Heinrich, Y. Tserkovnyak, G. Woltersdorf, A. Brataas, R. Urban, and G. E. W. Bauer, Phys. Rev. Lett. **90**, 187601 (2003).
- [41] M. V. Costache, M. Sladkov, S. M. Watts, C. H. van der Wal, and B. J. van Wees, Phys. Rev. Lett. **97**, 216603 (2006).
- [42] G. Woltersdorf, O. Mosendz, B. Heinrich, and C. H. Back, Phys. Rev. Lett. **99**, 246603 (2007).
- [43] H. Y. Inoue, K. Harii, K. Ando, K. Sasage and E. Saitoh, J. Appl. Phys. **102**, 083915 (2007).
- [44] K. Ando, Y. Kajiwara, S. Takahashi, S. Maekawa, K. Takemoto, M. Takatsu, and E. Saitoh, Phys. Rev. B **78**, 014413 (2008).
- [45] K. Ando, T. Yoshino, and E. Saitoh, Appl. Phys. Lett. **94**, 152509 (2009).
- [46] O. Mosendz, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, G. E. W. Bauer, S. D. Bader, and A. Hoffmann, Phys. Rev. Lett. **104**, 046601 (2010).
- [47] K. Ando, and E. Saitoh, J. Appl. Phys. **108**, 113925 (2010).
- [48] A. Azevedo, L. H. Vilela-Leão, R. L. Rodríguez-Suárez, A. F. Lacerda Santos, and S. M. Rezende, Phys. Rev. B **83**, 144402 (2011).
- [49] T. Yoshino, K. Ando, K. Harii, H. Nakayama, Y. Kajiwara, and E. Saitoh, Appl. Phys. Lett. **98**, 132503 (2011).
- [50] K. Ando, S. Takahashi, J. Ieda, Y. Kajiwara, H. Nakayama, T. Yoshino, K. Harii, Y. Fujikawa, M. Matsuo, S. Maekawa, and E. Saitoh, J. Appl. Phys. **109**, 103913 (2011).
- [51] F. D. Czeschka, L. Dreher, M. S. Brandt, M. Weiler, M. Althammer, I.-M. Imort, G. Reiss, A. Thomas, W. Schoch, W. Limmer, H. Huebl, R. Gross, and S. T.

- B. Goennenwein, Phys. Rev. Lett. **107**, 046601 (2011).
- [52] H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, T. Yoshino, R. Takahashi, Y. Kajiwara, K. Uchida, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, Phys. Rev. B **85**, 144408 (2012).
- [53] K. Ando, S. Takahashi, J. Ieda, H. Kurebayashi, T. Trypiniotis, C. H. W. Barnes, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature Mater. **10**, 655 (2011).
- [54] K. Ando and E. Saitoh, Nature Commun. **3**, 629 (2012).
- [55] E. Shikoh, K. Ando, K. Kubo, E. Saitoh, T. Shinjo, and M. Shiraishi, Phys. Rev. Lett. **110**, 127201 (2013).
- [56] L. Chen, F. Matsukura, and H. Ohno, Nature Commun. **4**, 3055 (2013).
- [57] Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature **464**, 262 (2010).
- [58] C. W. Sandweg, Y. Kajiwara, K. Ando, E. Saitoh, and B. Hillebrands, Appl. Phys. Lett. **97**, 252504 (2010).
- [59] C. W. Sandweg, Y. Kajiwara, A. V. Chumak, A. A. Serga, V. I. Vasyuchka, M. B. Jungfleisch, E. Saitoh, and B. Hillebrands, Phys. Rev. Lett. **106**, 216601 (2011).
- [60] K. Harii, T. An, Y. Kajiwara, K. Ando, H. Nakayama, T. Yoshino, and E. Saitoh, J. Appl. Phys. **109**, 116105 (2011).
- [61] H. Kurebayashi, O. Dzyapko, V. E. Demidov, D. Fang, A. J. Ferguson, and S. O. Demokritov, Nature Mater. **10**, 660 (2011).
- [62] K. Ando, T. An, and E. Saitoh, Appl. Phys. Lett. **99**, 092510 (2011).
- [63] K. Ando, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett. **109**, 026602 (2012).
- [64] A. V. Chumak, A. A. Serga, M. B. Jungfleisch, R. Neb, D. A. Bozhko, V. S. Tiberkevich, and B. Hillebrands, Appl. Phys. Lett. **100**, 082405 (2012).
- [65] R. Iguchi, K. Ando, R. Takahashi, T. An, E. Saitoh, and T. Sato, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 103004 (2012).
- [66] R. Iguchi, K. Ando, Z. Qiu, T. An, E. Saitoh, and T. Sato, Appl. Phys. Lett. **102**, 022406 (2013).
- [67] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, Phys. Rev. Lett.

- 98**, 156601 (2007).
- [68] L. Vila, T. Kimura, and Y. Otani, Phys. Rev. Lett. **99**, 226604 (2007).
- [69] T. Seki, Y. Hasegawa, S. Mitani, S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa, J. Nitta, and K. Takanashi, Nature Mater. **7**, 125 (2008).
- [70] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature **455**, 778 (2008).
- [71] K. Uchida, J. Xiao, H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, J. Ieda, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, H. Kawai, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature Mater. **9**, 894 (2010).
- [72] M. Matsuo, J. Ieda, E. Saitoh, and S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. **106**, 076601 (2011).
- [73] K. Uchida, H. Adachi, T. An, T. Ota, M. Toda, B. Hillebrands, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature Mater. **10**, 737 (2011).
- [74] *Introduction to Solid State Physics*, 8th ed. edited by C. Kittel (Wiley, New York, 2005).
- [75] *Physics of Ferromagnetism*, 2nd ed. edited by S. Chikazumi (Oxford University Press, Oxford, 1997).
- [76] H. Hasegawa, and J. Kanamori, J. Phys. Soc. Jpn. **31**, 382 (1971).
- [77] K. Ando, S. Takahashi, K. Harii, K. Sasage, J. Ieda, S. Maekawa, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett. **101**, 036601 (2008).
- [78] A. Moreira dos Santos, S. Parashar, A. R. Raju, Y. S. Zhao, A. K. Cheetham, and C. N. R. Rao, Solid State Commun. **122**, 49 (2002).
- [79] E. Ascher, H. Rieder, H. Schmid, and H. Stössel, J. Appl. Phys. **37**, 1404 (1966).
- [80] Y. Onose, T. Ideue, H. Katsura, Y. Shiomi, N. Nagaosa, Y. Tokura, Science **329**, 297 (2010).
- [81] T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima, and Y. Tokura, Nature **426**, 55 (2003).
- [82] T. Goto, T. Kimura, G. Lawes, A. P. Ramirez, and Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. **92**, 257201 (2004).
- [83] T. Kimura, G. Lawes, T. Goto, Y. Tokura, and A. P. Ramirez, Phys. Rev. B

- 71**, 224425 (2005).
- [84] G. Lawes, A. B. Harris, T. Kimura, N. Rogado, R. J. Cava, A. Aharony, O. Entin-Wohlman, T. Yildirim, M. Kenzelmann, C. Broholm, and A. P. Ramirez, Phys. Rev. Lett. **95**, 087205 (2005).
- [85] K. Taniguchi, N. Abe, T. Takenobu, Y. Iwasa, and T. Arima, Phys. Rev. Lett. **97**, 097203 (2006).
- [86] Y. Yamasaki, S. Miyasaka, Y. Kaneko, J.-P. He, T. Arima, and Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. **96**, 207204 (2006).
- [87] Y. Yamasaki, H. Sagayama, T. Goto, M. Matsuura, K. Hirota, T. Arima, and Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. **98**, 147204 (2007).
- [88] I. Cabrera, M. Kenzelmann, G. Lawes, Y. Chen, W. C. Chen, R. Erwin, T. R. Gentile, J. B. Leão, J. W. Lynn, N. Rogado, R. J. Cava, and C. Broholm, Phys. Rev. Lett. **103**, 087201 (2009).
- [89] T. Arima, J. Phys. Soc. Jpn **80**, 052001 (2011).
- [90] J. Kanamori, J. Phys. Chem. Solids **10**, 87 (1959).
- [91] Y. J. Choi, H. T. Yi, S. Lee, Q. Huang, V. Kiryukhin, and S.-W. Cheong, Phys. Rev. Lett. **100**, 047601 (2008).
- [92] Y. Tokunaga, N. Furukawa, H. Sakai, Y. Taguchi, T. Arima, and Y. Tokura, Nature Mater. **8**, 558 (2009).
- [93] H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
- [94] I. A. Sergienko, and E. Dagotto, Phys. Rev. B **73**, 094434 (2006).
- [95] C. Jia, S. Onoda, N. Nagaosa, and J. H. Han, Phys. Rev. B **74**, 224444 (2006).
- [96] C. Jia, S. Onoda, N. Nagaosa, and J. H. Han, Phys. Rev. B **76**, 144424 (2007).
- [97] M. Sparks, R. Loudon, and C. Kittel, Phys. Rev. **122**, 791 (1961).
- [98] *Spin Waves-Theory and Applications*, edited by D. D. Stancil, and A. Prabhakar (Springer, New York, 2009).
- [99] R. W. Damon, and J. R. Eshbach, J. Phys. Chem. Solids **19**, 308 (1960).
- [100] O. Mosendz, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, S. D. Bader, and A. Hoffmann, Appl. Phys. Lett. **96**, 022502 (2010).



- 
- [101] K. Uchida, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, H. Kawai, and E. Saitoh, J. Phys.: Conf. Series **303**, 012096 (2011).
  - [102] H. Nakayama, M. Althammer, Y.-T. Chen, K. Uchida, Y. Kajiwara, D. Kikuchi, T. Ohtani, S. Geprägs, M. Opel, S. Takahashi, R. Gross, G. E.W. Bauer, S. T. B. Goennenwein, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett. **110**, 206601 (2013).
  - [103] B. A. Kalinikos, IEE Proc. H-Microw. Opt. Antennas **127** 4 (1980).
  - [104] D. D. Stancil, J. Appl. Phys. **59**, 218 (1986).
  - [105] M. P.-Horvath, B. Keszei, J. Vandlik, and R. D. McMichael, J. Appl. Phys. **87**, 4969 (2000).

# 出版物リスト

## 公刊論文

1. K. Ando, T. Yoshino, and E. Saitoh, “Optimum condition for spin-current generation from magnetization precession in thin film systems,” *Applied Physics Letters* **94**, 152509 (2009).
2. T. Yoshino, Y. Kajiwara, K. Ando, H. Nakayama, T. Ota, K. Uchida, and E. Saitoh, “Detection of inverse spin-Hall effect in Nb and Nb<sub>40</sub>Ti<sub>60</sub> thin films,” *Journal of Physics: Conference Series* **200**, 062038 (2010).
3. H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, Y. Kajiwara, T. Yoshino, K. Uchida, T. Ota, and E. Saitoh, “Detection of inverse spin-Hall effect induced in Pt<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub> ( $M = \text{Cu, Au}$ ) thin films,” *Journal of Physics: Conference Series* **200**, 062014 (2010).
4. T. Ota, K. Uchida, Y. Kitamura, T. Yoshino, H. Nakayama, and E. Saitoh, “Electric detection of the spin-Seebeck effect in Ni and Fe thin films at room temperature,” *Journal of Physics: Conference Series* **200**, 062020 (2010).
5. K. Ando, T. Yoshino, N. Okamoto, Y. Kajiwara, K. Sasage, K. Uchida, and E. Saitoh, “Angular dependence of inverse spin-Hall effect induced by spin pumping: experimental verification of phenomenological model of spin pumping,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **322**, 1422 (2010).

6. H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, Y. Kajiwara, T. Yoshino, and E. Saitoh, Inverse spin-Hall effect in  $\text{Pt}_{1-x}\text{M}_x$  ( $M = \text{Cu}, \text{Au}$ ) thin films, *Journal of the Magnetism Society of Japan* **34**, 337 (2010).
7. H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, Y. Kajiwara, T. Yoshino, K. Uchida, and E. Saitoh, “Inverse spin-Hall effect induced by spin pumping in different thickness Pt films,” *IEEE Transaction on Magnetism* **46**, 2202 (2010).
8. T. Nonaka, K. Ando, T. Yoshino, and E. Saitoh, “Spin pumping and magnetization-precession trajectory in thin film systems,” *Journal of Physics: Conference Series* **266**, 012101 (2011).
9. T. Yoshino, K. Ando, K. Harii, H. Nakayama, Y. Kajiwara, and E. Saitoh, “Quantifying spin mixing conductance in  $F/\text{Pt}$  ( $F = \text{Ni}, \text{Fe}, \text{and Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ ) bilayer film,” *Journal of Physics: Conference Series* **266**, 012115 (2011).
10. H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, Y. Fujikawa, Y. Kajiwara, T. Yoshino, and E. Saitoh, “Inverse spin-Hall effect induced by spin pumping in different size  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Pt}$  films,” *Journal of Physics: Conference Series* **266**, 012100 (2011).
11. T. Yoshino, K. Ando, K. Harii, H. Nakayama, Y. Kajiwara, and E. Saitoh, “Universality of the spin pumping in metallic bilayer films,” *Applied Physics Letters* **98**, 132503 (2011).
12. K. Ando, S. Takahashi, J. Ieda, Y. Kajiwara, H. Nakayama, T. Yoshino, K. Harii, Y. Fujikawa, M. Matsuo, S. Maekawa, and E. Saitoh, “Inverse spin-Hall effect induced by spin pumping in metallic system,” *Journal of Applied Physics* **109**, 103913 (2011).
13. K. Harii, T. An, Y. Kajiwara, K. Ando, H. Nakayama, T. Yoshino, and E.

- Saitoh, "Frequency Dependence of Spin Pumping in Pt/Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> Film," *Journal of Applied Physics* **109**, 116105 (2011).
14. Z. Qiu, Y. Kajiwara, K. Ando, Y. Fujikawa, K. Uchida, T. Tashiro, K. Harii, T. Yoshino, and E. Saitoh, "All-oxide system for spin pumping," *Applied Physics Letters* **100**, 022402 (2012).
15. T. Yoshino, K. Ando, Y. Kajiwara, H. Nakayama, and E. Saitoh, "Scaling fit of spin pumping in various ferromagnetic materials," *Journal of Applied Physics* **111**, 07C502 (2012).
16. R. Takahashi, R. Iguchi, K. Ando, H. Nakayama, T. Yoshino, and E. Saitoh, "Electrical determination of spin mixing conductance at metal/insulator interface using inverse spin-Hall effect," *Journal of Applied Physics* **111**, 07C307 (2012).
17. H. Nakayama, T. Tashiro, R. Takahashi, Y. Kajiwara, T. Ohtani, K. Ando, R. Iguchi, K. Uchida, T. Yoshino, and E. Saitoh, "Suppression of spin pumping in the presence of thin titanium interlayer," *Key Engineering Materials* **508**, 347 (2012).
18. H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, T. Yoshino, R. Takahashi, Y. Kajiwara, K. Uchida, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, "Geometry dependence on inverse spin-Hall effect induced by spin pumping in Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Pt film," *Physical Review B* **85**, 144408 (2012).
19. D. Hou, Z. Qiu, K. Harii, Y. Kajiwara, K. Uchida, Y. Fujikawa, H. Nakayama, T. Yoshino, T. An, K. Ando, X.-F. Jin, and E. Saitoh, "Interface induced inverse Spin Hall effect in bismuth/permalloy bilayer," *Applied Physics Letters* **101**, 042403 (2012).

20. K. Uchida, T. Nonaka, T. Yoshino, T. Kikkawa, D. Kikuchi, and E. Saitoh, “Enhancement of spin-Seebeck voltage by spin-Hall thermopile,” *Applied Physics Express* **5**, 093001 (2012).
21. T. Tashiro, R. Takahashi, Y. Kajiwara, K. Ando, H. Nakayama, T. Yoshino, D. Kikuchi, and E. Saitoh, “Thickness dependence of spin pumping at YIG/Pt interface,” *Proc. SPIE* **8461**, Spintronics V, 846106 (2012).
22. A. Kawasuso, Y. Fukaya, M. Maekawa, H. Zhang, T. Seki, T. Yoshino, E. Saitoh, and K. Takanashi, “Current-induced spin polarization on a Pt surface,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **342**, 139 (2013).

## 国内学会・国際学会

1. 吉野達郎, 梶原瑛祐, 安藤和也, 齊藤英治, “強磁性体／常磁性体接合におけるスピ  
ンダイナミクスと逆スピンホール効果,” 日本物理学会第 64 回年次大会 (立教大  
学), 2009 年 3 月 28 日.
2. T. Yoshino, K. Ando, Y. Kajiwara, H. Nakayama, E. Saitoh, “Spin Current  
Generation and Spin Relaxation in  $F/\text{Pt}$  ( $F=\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$  and Co) Bilayer  
Films,” International Conference on Magnetism 2009, July 28th, 2009, (Karl-  
sruhe, Germany).
3. 吉野達郎, 安藤和也, 梶原瑛祐, 齊藤英治, “強磁性/常磁性金属薄膜におけるスピン  
ポンピングの物質依存性,” 特定領域研究「スピン流の創出と制御」平成 21 年度研  
究会 (北海道大学), 2009 年 8 月 10 日.
4. 吉野達郎, 安藤和也, 梶原瑛祐, 中山裕康, 齊藤英治, “強磁性/常磁性金属薄膜にお  
けるスピンポンピングの物質依存性,” 応用物理学会第 70 回学術講演会 (富山大  
学), 2009 年 9 月 10 日.
5. T. Yoshino, K. Ando, K. Harii, Y. Kajiwara, H. Nakayama, and E. Saitoh,  
“Spin current generation and detection in  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{Pt}$  thin film systems,”  
The 2nd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Ap-  
plications (ISAMMA 2010), July 15, 2010, (Sendai, Japan).
6. T. Yoshino, K. Ando, K. Harii, Y. Kajiwara, and E. Saitoh, “Guideline for spin  
current generation in  $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{Pt}$  bilayer films using inverse spin-Hall effect  
and spin pumping,” IEEE International Magnetism Conference 2011, April 26th,  
2011, (Taipei, Taiwan).
7. 吉野達郎, 安藤和也, 中山裕康, 齊藤英治, “ $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{Pt}$  薄膜におけるスピンポン

- ブ誘起スピン流の物質依存性,” 第 35 回 日本磁気学会学術講演会 (朱鷺メッセ), 2011 年 9 月 29 日.
8. T. Yoshino, K. Ando, K. Harii, H. Nakayama, Y. Kajiwara, and E. Saitoh, “Material dependence of the spin pumping in metallic bilayer films” , The 56th Magnetism and Magnetic Materials Conference, November 2nd, 2011, (Scottsdale, Arizona, USA).
9. T. Yoshino, K. Ando, H. Nakayama, and E. Saitoh, “Universality of the spin pumping in ferromagnetic material/Pt bilayer films,” IMR/ Korea University Student Joint Seminar, December 12th, 2011, (Seoul, Korea).
10. T. Yoshino, K. Ando, Y. Kajiwara, H. Nakayama, and E. Saitoh, “Material dependence of the spin pumping in metallic bilayer films,” Annual ASPIMATT Meeting, July 4th, 2013, (Dresden, Germany).